





Carrying out chemical processes comprises introducing two fluids together into micro-mixer having fluid channels

Publication number:	DE10148615 (A1)	Also published as:	
Publication date:	2003-04-24		DE10148615 (B4)
Inventor(s):	HESSEL VOLKER [DE]; SCHENK RAINER [DE]; SCHOENFELD FRIEDHELM [DE]; HOFMANN CHRISTIAN [DE]; WERNER BERND [DE] +	Cited documents:	
Applicant(s):	INST MIKROTECHNIK MAINZ GMBH [DE] +		DE19925184 (A1)
Classification:			DE19800529 (A1)
- international:	B01F13/00; B01J19/00; B01F13/00; B01J19/00; (IPC1-7): B01F5/06; B01J19/00		WO9530476 (A1)
- European:	B01F13/00M2A; B01F13/00M2B; B01F13/00M2C; B01F13/00M2C2; B01F13/00M4A; B01J19/00R		
Application number:	DE20011048615 20010926		
Priority number(s):	DE20011048615 20010926		

Abstract of **DE 10148615 (A1)**
Carrying out chemical processes comprises introducing two fluids together into a micro-mixer having fluid channels. The fluids react to form precipitates or suspensions and are introduced separated by a separating fluid into a mixing chamber or a reaction path. An Independent claim is also included for a device for carrying out chemical processes comprising a micro-mixer having fluid connections (23, 24, 25) with micro-channels (29, 30, 31) for the fluids. An outlet opening for the separating fluid is arranged between the outlet openings of the micro-channels for the fluids. Preferred Features: The fluids are removed as concentric fluid streams having different flow speeds. The speed of the separating fluid is different from the speed of the fluids. The flow speed of the concentric fluids is 1-1000 ml/h. A tube having a rectangular cross-section is used as the reaction path.

.....
Data supplied from the **espacenet** database — Worldwide



①⑨ **BUNDESREPUBLIK
DEUTSCHLAND**



**DEUTSCHES
PATENT- UND
MARKENAMT**

①⑫ **Offenlegungsschrift**
①⑩ **DE 101 48 615 A 1**

⑤① Int. Cl.⁷:
B 01 J 19/00
B 01 F 5/06

②① Aktenzeichen: 101 48 615.4
②② Anmeldetag: 26. 9. 2001
④③ Offenlegungstag: 24. 4. 2003

DE 101 48 615 A 1

⑦① Anmelder:
Institut für Mikrotechnik Mainz GmbH, 55129 Mainz,
DE

⑦④ Vertreter:
Fuchs, Mehler, Weiss & Fritzsche, 65201 Wiesbaden

⑦② Erfinder:
Hessel, Volker, Dr., 65510 Hünstetten, DE; Schenk,
Rainer, Dr., 65451 Kelsterbach, DE; Schönfeld,
Friedhelm, Dr., 55116 Mainz, DE; Hofmann,
Christian, 55118 Mainz, DE; Werner, Bernd, Dr.,
64319 Pfungstadt, DE

⑤⑥ Entgegenhaltungen:
DE 199 25 184 A1
DE 198 00 529 A1
WO 95 30 476 A1

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

⑤④ Verfahren und Vorrichtung zur Durchführung chemischer Prozesse

⑤⑦ Es wird ein Verfahren zur Durchführung chemischer Prozesse beschrieben, bei dem mindestens zwei unter Ausbildung von Niederschlägen oder Suspensionen reagierende Fluide F1, F2 in einem Fluidkanäle aufweisenden Mikrovermischer zusammengeführt werden. Um Verstopfungen des Mikrovermischers zu verhindern, werden die mindestens zwei Fluide F1, F2 durch ein Trennfluid T getrennt voneinander in eine Mischerkammer oder eine Reaktionsstrecke eingeleitet. Eine vorzeitige Reaktion der Fluide F1, F2 wird dadurch vermieden und in einen unkritischen Bereich einer Mischervorrichtung verlagert. Die Fluide F1, F2 und T können als konzentrische Fluidströme oder als Fluidlamellen ausgetragen werden. Es wird auch ein Mikrovermischer beschrieben, mit dem das Verfahren ausführbar ist.

DE 101 48 615 A 1

[0001] Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Durchführung chemischer Prozesse gemäß dem Oberbegriff des Patentanspruchs 1. Die Erfindung bezieht sich auch auf eine Vorrichtung zur Durchführung chemischer Prozesse gemäß dem Oberbegriff des Patentanspruchs 19.

[0002] Es ist bekannt, daß die Güte einer Vermischung und der Einfluß der Mischvorrichtung auf die Ausbeute an erwünschtem Produkt in großem Maße vom Verhältnis der durch die Reaktionskinetik gegebenen chemischen Reaktionsgeschwindigkeit zur Mischgeschwindigkeit abhängt. Handelt es sich bei den chemischen Reaktionen um langsame Reaktionen, so ist die chemische Reaktion in der Regel wesentlich langsamer als die Vermischung. Die Bruttoreaktionsgeschwindigkeit und die Ausbeute an erwünschtem Produkt wird dann durch den langsamsten Schritt, nämlich die Kinetiken der ablaufenden chemischen Reaktionen, und dazu durch das globale Vermischungsverhalten des verwendeten chemischen Reaktors bestimmt. Liegen die chemischen Reaktionsgeschwindigkeiten und die Vermischungsgeschwindigkeiten in der gleichen Größenordnung, so kommt es zu komplexen Wechselwirkungen zwischen den Kinetiken der Reaktionen und dem lokalen, durch die Turbulenz bestimmten Vermischungsverhalten im verwendeten Reaktor. Tritt der Fall ein, daß die chemischen Reaktionsgeschwindigkeiten wesentlich schneller sind als die Mischgeschwindigkeit, so werden die Bruttogeschwindigkeiten der ablaufenden Reaktionen und die Ausbeuten im wesentlichen durch die Vermischung bestimmt.

[0003] Mikrovermischer erlauben aufgrund der Regelmäßigkeit, Schnelligkeit und Vorhersagbarkeit ihrer Mischung Reaktionen für alle drei der oben genannten Fälle positiv zu beeinflussen.

[0004] Wenn es sich um schnelle Reaktionen zwischen zwei oder mehr Fluiden handelt, bei dem zusätzlich Niederschläge, z. B. in Form von Pulvern, oder allgemeiner in Form von Suspensionen auftreten, verstopfen herkömmliche Mikrovermischer sehr schnell, oft sogar innerhalb weniger als einer Sekunde, und werden dadurch unbrauchbar. Dies trifft insbesondere auf viele organische Reaktionen zu, und hier gerade auf metallorganische Prozesse, die oft zur Bildung ionischer Spezies in wenig polaren oder unpolaren Lösungsmitteln führen, mit der Konsequenz einer Ausfällung dieser Spezies. In einigen wenigen Fällen läßt sich der Prozeß zwar durchführen, verlangt aber aufwendige Reinigungsprozeduren mit hohen Ausfallzeiten.

[0005] Solch problematische Ausfällungen in einem Interdigitalmikrovermischer wurden für Reaktionen aus dem Bereich der anorganischen Chemie, z. B. in "Suitability of Various Types of Micromixers for the Forced Precipitation of Calcium Carbonate" von R. Schenk et al. in Proceedings of the "5th International Conference on Microreaction Technology, IMRET 5", 27–30 May, 2001, Strasbourg, France, beschrieben. Der Interdigitalmischer konnte nur im Sekunden- oder Minutenbereich betrieben werden.

[0006] In den meisten Fällen allerdings verhindert die Ausfällung überhaupt einen Einsatz von Mikrovermischem. Bedenkt man die hohe Zahl von Reaktionen mit Ausfällungen, bedeutet dies, daß der Anwendungsbereich von Mikromischern wesentlich eingeschränkt ist. Um diesem Problem zu begegnen, wurde daher von Mikrovermischem auf größere Vermischer, sogenannte Minimischer übergegangen, die aber nur teilweise die für Mikrovermischer typischen, vorteilhaften Eigenschaften – Regelmäßigkeit, Schnelligkeit und Vorhersagbarkeit – der Mischung aufweisen. Damit ist die Leistungsfähigkeit der Minimischer gemäß der oben aufgezeigten Anwendungsfälle eingeschränkt. Außerdem müssen größere Mengen an Fluiden eingesetzt werden, was gerade für Screening- oder Prozeßoptimierungsaufgaben zu unnötigem Abfall führt und z. T. teure Chemikalien in großer Menge verbraucht.

[0007] Aufgabe der Erfindung ist es daher, ein Verfahren zur Durchführung von chemischen Prozessen bereitzustellen, das eine Verstopfung von Mikrovermischem, z. B. an den Austrittsöffnungen zur Mischkammer oder in der Mischkammer selbst, beim Zusammenführen von mindestens zwei miteinander reagierenden Fluiden durch die sich hierbei bildenden Niederschläge oder Suspensionen vermeidet. Es ist auch Aufgabe der Erfindung, eine Vorrichtung zur Durchführung derartiger chemischer Prozesse bereitzustellen, die beim Betrieb mit derart reagierenden Fluiden nicht verstopft.

[0008] Diese Aufgabe wird mit einem Verfahren gelöst, bei dem die mindestens zwei Fluide F1, F2 durch ein Trennfluid T getrennt voneinander in eine Mischerkammer des Mikrovermischers oder eine Reaktionsstrecke eingeleitet werden.

[0009] Unter dem Begriff Mikrovermischer werden Vorrichtungen verstanden, die Zuleitungen für die zu vermischenden Fluide aufweisen, wobei mindestens zwei Mikrokanäle in einer bestimmten vorgegebenen Anordnung in eine Mischerkammer münden. Die Abmessungen der Mikrokanäle liegen im Bereich von 1 µm bis 1 mm. Die zu verarbeitenden Mengen liegen im Bereich von 1 ml/h bis 10 000 l/h, wobei Durchsatzgeschwindigkeiten bzw. Fließgeschwindigkeiten von 1 mm/s bis 100 m/s erreicht werden.

[0010] Mikrovermischer sind zu unterscheiden von den Minimischern, bei denen der Durchsatz in der Größenordnung von 100 l/h bis 100 000 l/h liegt.

[0011] Der Erfindung liegt die Erkenntnis zugrunde, daß bei Reaktionen, insbesondere schnell ablaufenden Reaktionen, die mit Niederschlägen oder Suspensionen verbunden sind, der Kontakt der miteinander reagierenden Fluide zunächst über eine gewisse Zeit verzögert wird, bis die zusammengeführten Fluide in einen Bereich des Mikrovermischers eingetreten sind, in dem der Niederschlag oder die Suspensionen nicht in gleicher Weise schädlich ist, wie im Mischelement selbst, d. h. im Bereich der Austrittsöffnungen der Mikrokanäle und in der Mischerkammer selbst.

[0012] Dies gilt insbesondere für die in der Chemietechnik häufig verwendete Anlagenkombination Mischer – Reaktor. Hier verstopft vor allem der Mischer, während die Dimension des nachfolgenden (Rohr-)Reaktors viel flexibler an die Bedürfnisse einer Reaktion mit Niederschlägen angepaßt werden können.

[0013] Dadurch, daß die mindestens zwei miteinander reagierenden Fluide F1 und F2 durch das mit den Fluiden F1, F2 vorzugsweise mischbare Trennfluid T voneinander getrennt in die Mischerkammer eingeleitet werden, kommt es im Bereich der Austrittsöffnungen der Mikrokanäle, die in die Mischerkammer münden, noch nicht zu einem Kontakt der Fluide, so daß eine Reaktion zwischen den Fluiden und ein Ausfallen von Niederschlag oder Suspension noch nicht stattfinden kann. Es ist daher von Vorteil, wenn in unmittelbarer Nähe der Austrittsöffnung die Fluide als laminare Strömungen austreten, so daß keine Turbulenzen in diesem Bereich auftreten, die zu einer vorzeitigen Vermischung und Auflö-

sung der Trennschicht führen könnten.

[0014] In der unmittelbaren Nähe der Austrittsöffnungen kann allenfalls eine Quervermischung nur aufgrund von Diffusionseffekten stattfinden, die so langsam ablaufen, daß es noch nicht zu einer unmittelbaren Kontaktierung der miteinander reagierenden Fluide kommen kann. Bei dem erfindungsgemäßen Verfahren kommt es darauf an, daß die Reaktion und die Vermischung der Fluide verzögert wird und in einen anderen Bereich der Vorrichtung verlagert wird. 5

[0015] Die Erfindung umfaßt im wesentlichen zwei Varianten, ohne jedoch auf diese beiden Verfahrensvarianten beschränkt zu sein.

[0016] Vorzugsweise werden die Fluide F1, F2 und T als konzentrische Fluidströme ausgetragen, wobei der Fluidstrom des mit den Fluiden F1 und F2 mischbaren Trennfluids T sich zwischen den Fluidströmen der Fluide F1 und F2 befindet. Je nach Anwendungsfall ist die Strömungsgeschwindigkeit der Fluidströme unterschiedlich. 10

[0017] Die zweite bevorzugte Verfahrensvariante sieht vor, daß die Fluide F1, F2 und T als Fluidlamellen in die Mischerkammer eingeleitet werden, wobei die Fluidlamellen ebenso wie die konzentrischen Fluidströme der Fluide F1, F2 alternierend angeordnet und jeweils durch eine Fluidlamelle des Trennfluids T voneinander getrennt sind.

[0018] Aufgrund einer über den gesamten Mischbereich laminaren Strömung in den Mikrokanälen bzw. Ringkanälen wird ein turbulenzfreier Austritt aus den Austrittsöffnungen gewährleistet. Fluidlamellen sind Flüssigkeitsströme mit im wesentlichen rechteckigem oder quadratischem Querschnitt. 15

[0019] In einer bevorzugten Ausführungsform dieser Ausführungsvariante wird somit in der Mischerkammer ein Fluidlamellenpaket gebildet, das im einfachsten Fall aus drei Fluidlamellen bestehen kann, nämlich den Fluidlamellen F1, T und F2. Vorzugsweise werden auch die äußeren Fluidlamellen F1 und F2 von einer Trennfluidlamelle T umgeben, so daß der bevorzugte einfachste Fall aus fünf Fluidlamellen besteht. In der praktischen Durchführung wird man jedoch zu einer Vielzahl von Fluidlamellen übergehen, um den Durchsatz der Mischvorrichtung zu erhöhen. Zwischen den Fluidlamellen kann allenfalls eine Vermischung aufgrund von Diffusionseffekten stattfinden. Wichtig ist auch bei dieser Ausführungsvariante, daß im Bereich der Austrittsöffnungen noch keine direkte Kontaktierung der miteinander reagierenden Fluide stattfinden kann, was dort zu einer Verstopfung der Austrittsöffnungen durch die sich bildenden Niederschläge führen könnte. 20 25

[0020] Die Dicke D der konzentrischen Fluidströme oder der Fluidlamellen der Fluide F1, F2 und T wird beim Einleiten der Fluide derart gewählt, daß bis auf Diffusionseffekte keine Vermischung der Fluide F1, F2 und T stattfindet. Vorzugsweise wird die Dicke D im Bereich zwischen 1 µm und 1000 µm gewählt. Die Dicke hängt im wesentlichen davon ab, wie reaktiv die beteiligten Fluide F1, F2 sind und wie stark Diffusionseffekte im Bereich der Austrittsöffnung bereits zu einer Niederschlagsbildung führen können. 30

[0021] Bei beiden Verfahrensvarianten können beim Einleiten der Fluide F1, F2 und T Tropfen oder kontinuierliche Fluidstrahlen als Fluid-Ringstrahlen oder Fluid-Lamellenstrahlen gebildet werden. Vorzugsweise werden die Tropfen oder Fluidstrahlen in ein mit den Fluiden F1, F2 nicht mischbares Aufnahmefluid A ausgetragen, das ein Gas, also auch Luft, oder eine andere Flüssigkeit sein kann. Vorzugsweise ist das Aufnahmefluid A im Fall von wäßrigen oder alkoholischen Lösungen F1, F2 ein unpolares organisches Lösungsmittel. Besonders bevorzugt ist als Aufnahmefluid A ein flüssiges Alkan, wie z. B. Cycloalkan, n-Alkan, Hexan, Oktan, Dekan, Dodekan usw.. Im umgekehrten Fall, in dem unpolare Flüssigkeiten F1 und F2 miteinander vermischt werden sollen, ist das Aufnahmefluid vorzugsweise ein polares mit den Flüssigkeiten F1 und F2 nicht mischbares Fluid, beispielsweise Wasser oder ein Alkohol. 35

[0022] Vorzugsweise wird eine senkrechte Anordnung gewählt, was bedeutet, daß die Tropfen oder Fluidstrahlen senkrecht nach unten aus den Austrittsöffnungen abgegeben werden. Das Aufnahmefluid dient zur Führung der zu mischenden Fluide, indem es eine Phasengrenzfläche flüssig/flüssig oder gas/flüssig mit den zu mischenden Fluiden bildet, und gegebenenfalls zu ihrer Temperierung. Es verhindert so den Kontakt der zu mischenden Fluide mit der Oberfläche des Mikromischers bzw. einer Mischerstrecke, z. B. eines Rohrreaktors, wobei der Wärmetransport (durch vorgewärmte Flüssigkeit/ Luft) erwünscht ist, nicht jedoch der Stofftransport. Insbesondere ein Transport vorhandener Partikel durch Konvektion oder von gelösten Keimen durch Diffusion und/oder Konvektion an die Wände wird so verhindert. 40 45

[0023] Die Mischerkammer ist vorzugsweise mit dem Aufnahmefluid A gefüllt, das vorzugsweise bis an die Austrittsöffnungen der Mikrokanäle des Mikrovermischers heranreicht. Dies bedeutet, daß die Tropfen oder Fluidstrahlen unmittelbar bei ihrer Bildung in das Aufnahmefluid A ausgetragen werden. Dadurch, daß das Aufnahmefluid A mit den Fluiden F1, F2 und T nicht mischbar ist, bleibt die Tropfenform oder die Fluidstrahlen in dem Aufnahmefluid zunächst erhalten. 50

[0024] Für Reaktionen mit sehr schneller, problematischer Niederschlagsbildung ist in einer bevorzugten Ausführungsform die Strömungsgeschwindigkeit des Trennfluids T größer als die Strömungsgeschwindigkeit der Fluide F1 und F2. Dadurch wird es möglich, eine relativ große Menge an Trennfluid zwischen den Fluiden F1 und F2 auszutragen, so daß eine größere Diffusionsbarriere aufgebaut wird und dies insbesondere und unmittelbar an den Austrittsöffnungen zur Mischkammer. 55

[0025] Bei der Bildung der Tropfen bedeutet dies, daß sich die reaktiven Fluide F1 und F2 möglichst in der Tropfenspitze ansammeln und die Austrittsöffnung im wesentlichen von dem Trennfluid T umspült wird.

[0026] Wie die Strömungsgeschwindigkeiten zu wählen sind, hängt von der Reaktivität und den physikalischen Eigenschaften der Fluide F1 und F2 und den Abmessungen der Austrittsöffnungen sowie den Konzentrationen ab.

[0027] Vorzugsweise liegen die Strömungsgeschwindigkeiten der Fluide F1, F2 und T zwischen 1 und 1000 ml/h. 60

[0028] Bei der Wahl des geeigneten Verhältnisses der Strömungsgeschwindigkeiten kommt es darauf an, daß eine möglichst turbulenzfreie und wirbelfreie Strömung im Bereich der Austrittsöffnungen vorliegt, wobei Turbulenzen und Wirbel vor allem im Tropfenspitzenbereich nicht immer ganz vermieden werden können. Größere Geschwindigkeiten des Trennfluids bewirken, daß die miteinander reagierenden Fluide F1 und F2 möglichst schnell von der Austrittsöffnung weggetragen werden und in der Tropfenspitze konzentriert werden. Zudem erhöht sich die Geschwindigkeit der Tropfenbildung und des Tropfenabrisses. 65

[0029] Die gebildeten Tropfen werden zusammen mit dem Aufnahmefluid abgeführt und es ist von Vorteil, wenn die Tropfen einer Reaktionsstrecke zugeführt werden, die beispielsweise ein sogenannter Rohrreaktor sein kann. Hier han-

delt es sich im wesentlichen um eine im Querschnitt an die Tropfengröße angepaßte Rohrstrecke, deren Länge mehrere Meter betragen kann. Wenn nacheinander Tropfen in das Aufnahmefluid ausgetragen werden, bildet sich eine Tropfenreihe, wobei die Tropfen durch das Aufnahmefluid getrennt sind.

5 **[0030]** Vorzugsweise werden die Tropfen in einer solchen Reaktionsstrecke so lange geführt, bis die Reaktion zwischen den Fluiden F1 und F2 weitgehend beendet ist. Unter weitgehend wird hier eine Umsetzung von mindestens 80% des Gleichgewichtswerts einer vergleichbaren Batch-Reaktion der Fluide verstanden, so daß der Großteil des dadurch erzeugten Niederschlags im Rohrreaktor anfällt und aufgrund der Strömung im Rohrreaktor mit ausgetragen wird. Die Niederschlagsbildung im Rohrreaktor stört insofern nicht, als in den meisten Fällen die Lauflänge aufgrund der großen Reaktionsgeschwindigkeit kurz gehalten werden kann oder allgemein es keine Bereiche gibt, in denen sich der Nieder-

10 schlag ablagern könnte und zu einer Verstopfung führen könnte. Der günstigste Fall tritt dann ein, wenn die Reaktionsstrecke so lang gewählt ist, daß die Umsetzung der Reaktion zwischen den Fluiden F1 und F2 vollständig beendet ist. Dann liegt auch die gesamte Niederschlagsmenge bereits im Rohrreaktor vor. Durch geeignete Auffangmaßnahmen kann der Niederschlag am Austritt der Reaktionsstrecke von dem angestrebten Reaktionsprodukt abgetrennt werden.

15 **[0031]** Auch bei der Verfahrensvariante, die Fluidstrahlen vorsieht, wird der Fluidlamellenstrahl, und zwar das gesamte Fluidlamellenpaket, in eine Reaktionsstrecke eingeführt, in der die Fluidstrahlen so lange geführt werden, bis die Reaktion zwischen den Fluiden F1, F2 unter Auflösung der Fluidlamellen oder konzentrischen Fluidströme des Trennfluids T weitgehend beendet ist. Auch bei dieser Ausführungsform ist es wichtig, daß die Niederschlagsbildung erst in der Reaktionsstrecke auftritt, die ebenso wie bei der ersten Verfahrensvariante ein sogenannter Rohrreaktor sein kann.

20 **[0032]** Vorzugsweise vermischen sich in der Reaktionsstrecke durch fortschreitende Diffusion quer zur Strömungsrichtung die Lamellen oder Ringströme des Trennfluids und der beiden Fluide F1 und F2, so daß es in der Reaktionsstrecke zu einer Kontaktierung der Fluide F1 und F2 miteinander kommt.

[0033] Vorzugsweise wird als Reaktionselement ein Rohr verwendet, das vorzugsweise einen rechteckigen Querschnitt aufweist, so daß das Rohr im wesentlichen an die Rechteckkontur des Fluidlamellenpakets angepaßt ist.

25 **[0034]** Am Ende der Mischstrecke wird das Reaktionsprodukt, der Niederschlag und/oder die Suspension aufgefangen und das Reaktionsprodukt vom Niederschlag und/oder den festen Bestandteilen der Suspension abgetrennt. Die Vorrichtung zur Durchführung chemischer Prozesse sieht vor, daß der Mikrovermischer mindestens drei Fluidanschlüsse mit mindestens drei Mikrokanälen für die Fluide F1, F2 und für ein Trennfluid T aufweist, wobei zwischen den Austrittsöffnungen der Mikrokanäle für die Fluide F1, F2 jeweils eine Austrittsöffnung für das Trennfluid T angeordnet ist.

30 **[0035]** Da herkömmliche Mikrovermischer die Möglichkeit nicht vorsehen, daß zwischen zwei miteinander reagierenden Fluiden ein Trennfluid eingeleitet werden kann, ist eine Neukonstruktion von Mikrovermischem erforderlich, bei der auch hinsichtlich der Abmessungen und hier insbesondere der Dicke der Trennschicht des Trennfluids T und den Diffusionseffekten durch das Trennfluid Rechnung getragen muß.

35 **[0036]** Gemäß einer ersten Ausführungsform der Vorrichtung, die der ersten Verfahrensvariante entspricht, sind die Austrittsöffnungen konzentrisch angeordnet. Konzentrische Austrittsöffnungen können so verstanden werden, daß alle Austrittsöffnungen ringförmig sind. Es besteht aber auch die Möglichkeit, im Zentrum eine kreisförmige Öffnung vorzusehen, die von ringförmigen weiteren Austrittsöffnungen umgeben ist. Die letztere Ausführungsform ist bevorzugt hinsichtlich der Ausbildung von Tropfen, die gemäß der ersten Verfahrensvariante vorgesehen ist.

[0037] Die zentrale Austrittsöffnung kann von mindestens zwei ringförmigen Austrittsöffnungen umgeben sein.

40 **[0038]** Vorzugsweise sind die ringförmigen Austrittsöffnungen gegenüber der kreisförmigen Austrittsöffnung zurückversetzt angeordnet.

[0039] Vorteilhafterweise sind alle Austrittsöffnungen beginnend mit der inneren Austrittsöffnung zueinander stufenweise zurückversetzt. Diese Anordnung von Austrittsöffnungen hat den Vorteil, daß die Tropfenbildung begünstigt wird.

45 **[0040]** Gemäß der zweiten Ausführungsform der Vorrichtung ist der Mikrovermischer ein Interdigitalmischer mit mindestens drei Mikrokanalgruppen, wobei die Mikrokanäle der drei Gruppen alternierend nebeneinander angeordnet sind. Das Kennzeichen eines Interdigitalmischers ist das kammartige Ineinandergreifen der Mikrokanalgruppen. Ein typischer Interdigitalmischer wird beispielsweise in

– Ehrfeld, W et al. "Characterization of mixing in micromixers by a test reaction . . .", Ind. Eng. Chem. Res. 38, 3 (1999), S. 1075 ff

50 – Herweck, T. et al. "Visualisation of flow patterns and . . ." Proceedings of the 5th International Conference on Microreaction Technology, IMRET 5, May 2001, Strasbourg, France, beschrieben.

55 **[0041]** Im Gegensatz zu diesem bekannten Interdigitalmischer sind insgesamt drei Gruppen von Mikrokanälen für die Fluide F1, F2 und T vorhanden, wobei die Mikrokanäle der drei Gruppen alternierend nebeneinander angeordnet sind. Vorzugsweise entspricht die Anzahl der Mikrokanäle für das Trennfluid T der Anzahl der Summe der Fluidkanäle für die Fluide F1 und F2 plus 1.

60 **[0042]** Vorzugsweise ist die Mischerkammer direkt an einen Rohrreaktor gekoppelt. Dies bedeutet, daß die Tropfen bzw. die Fluidlamellen unmittelbar nach ihrer Bildung in der Mischerkammer in die Reaktionsstrecke eingeleitet werden. Besonders bevorzugt treten die Fluide direkt aus den Austrittsöffnungen in einen Rohrreaktor ein, so daß keine Mischkammer benötigt wird.

[0043] Am Ausgang des Rohrreaktors ist vorzugsweise ein Separator vorgesehen, in dem die einzelnen Komponenten wie Reaktionsprodukt und Niederschläge usw. voneinander abgetrennt werden können.

65 **[0044]** Der Rohrreaktor kann mit einer Heizeinrichtung versehen sein, um beispielsweise die Reaktion zwischen den Fluiden zu begünstigen. Bei exothermen Reaktionen ist es von Vorteil, wenn anstelle einer Heizeinrichtung eine Kühleinrichtung vorgesehen ist. Die Heiz- bzw. Kühleinrichtungen umgeben den Rohrreaktor beispielsweise in Form von Heiz- oder Kühlschlangen.

[0045] Darüber hinaus ist es möglich, Abschnitte des Rohrreaktors mit unterschiedlichen Querschnittsformen und/oder unterschiedlichen Querschnittsgrößen zu versehen, um beispielsweise auf diese Art und Weise eine Störung der Strö-

- mung innerhalb des Rohrreaktors zu beeinflussen und dadurch eventuell die Fluide vorzeitig in Reaktion miteinander zu bringen. Es wird dadurch möglich, die Reaktionstrecke insgesamt zu verkürzen.
- [0046] Beispielhafte Ausführungsformen der Erfindung werden nachfolgend anhand der Zeichnungen näher erläutert.
- [0047] Es zeigen:
- [0048] Fig. 1a + 1b schematische Darstellungen der Verfahrensvarianten, 5
- [0049] Fig. 2 eine perspektivische Darstellung teilweise im Schnitt eines Mikrovermischers gemäß einer ersten Ausführungsform,
- [0050] Fig. 3 einen Querschnitt durch die Fluidstromanordnung gemäß des Mikrovermischers der Fig. 2,
- [0051] Fig. 4a + 4b vergrößerte Darstellungen der Austrittsöffnungen und der sie bildenden Rohre in einer perspektivischen Darstellung und in einer seitlichen Ansicht, 10
- [0052] Fig. 5a–5d Beispiele für die Tropfenbildung am Ausgang der in den Fig. 4a und 4b gezeigten Rohre für unterschiedliche Strömungsgeschwindigkeiten und Konzentrationen der Fluide F1 und F2,
- [0053] Fig. 6 eine perspektivische Darstellung eines Mikrovermischers gemäß einer weiteren Ausführungsform,
- [0054] Fig. 7 ein von dem in Fig. 6 gezeigten Mikrovermischer erzeugtes Fluidlamellenpaket im Schnitt,
- [0055] Fig. 8 die den Mikrovermischer bildenden Mischerplatten in Explosionsdarstellung, 15
- [0056] Fig. 9 eine vergrößerte Darstellung der Interdigitalstruktur und der Mischerkammer des in Fig. 6 dargestellten Mikrovermischers,
- [0057] Fig. 10 ein Extinktionsspektrum,
- [0058] Fig. 11 ein Transmissionsspektrum.
- [0059] In den Fig. 1a und 1b sind die verschiedenen Verfahrensvarianten schematisch dargestellt. Wenn die Fluide F1, F2 und T in Form von konzentrischen Fluidströmen ausgetragen werden, sogenannte Ringstrommischung, kann einerseits eine Tropfenbildung und andererseits eine Ringstrahlbildung vorgesehen werden. Wenn Tropfen gebildet werden, können diese in eine Mischkammer mit einem Aufnahmefluid ausgetragen werden, an die sich ein Rohrreaktor anschließt. Die Tropfenaustragung kann aber auch direkt in den Rohrreaktor erfolgen. Bei der Ringstrahlbildung bestehen ebenfalls zwei Möglichkeiten. Der Ringstrahl kann in eine Mischkammer mit einem Aufnahmefluid ausgetragen werden. Es kann aber auch unmittelbar eine Austragung in den Rohrreaktor erfolgen. 20
- [0060] Bei der Austragung der Fluidströme in Form von Fluidlamellen kann ebenfalls eine Tropfenbildung oder eine Lamellenstrahlbildung erfolgen. Bei der Tropfenbildung ist ein Austragen in eine Mischkammer mit oder ohne Aufnahmefluid möglich, wobei anschließend die Tropfen in einen Rohrreaktor eingeleitet werden. Die Tropfen können aber auch direkt in den Rohrreaktor abgegeben werden. 25
- [0061] Bei der Lamellenstrahlbildung sind ebenfalls beide Varianten möglich.
- [0062] In der Fig. 2 ist ein Mikrovermischer 22 in perspektivischer Darstellung teilweise auch im Schnitt zu sehen. Dieser Mikrovermischer besteht aus insgesamt vier Platten 28a, 28b, 28c, 28d, die übereinander unter Zwischenlegung von Graphitschichten angeordnet sind. Die einzelnen Platten werden gegeneinander verschraubt, was nicht im einzelnen dargestellt ist. Senkrecht zur Plattenebene ist ein Zentralkanal 29 angeordnet, der am oberen Ende mit einem Rohrstück den Fluidanschluß 24 für das Fluid F2 bildet. Senkrecht zu diesem Zentralkanal ist in der Platte 28c ein Fluidanschluß 23 für das Fluid F1 und in der Platte 28b ein Fluidanschluß 25 für das Trennfluid T angeordnet. Diese Anschlüsse setzen sich im Innern der Platte über entsprechende Mikrokanäle bis zum Zentrum der Platten fort und münden dort in die Ringkanäle 30 bzw. 31, die zum Auslaß 38 führen. Aufgrund der Anordnung von Zentralkanal 29 und der Ringkanäle 30 und 31 werden Fluidströme gebildet, die im Querschnitt in der Fig. 3 dargestellt sind. 30
- [0063] Im Zentrum befindet sich die kreisförmige Austrittsöffnung 32, die von den ringförmigen Austrittsöffnungen 33 und 34 umgeben ist. Da in den Zentralkanal 32 das Fluid F1 eingeleitet wird und in die Ringkanäle 30 und 31 das Trennfluid T bzw. das Fluid F2, ergibt sich eine Fluidstromanordnung, bei der die beiden Fluide F1 und F2 von dem Trennfluid T getrennt sind. Es wird dadurch am Auslaß 38 vermieden, daß es bereits zu einem Kontakt der Fluide F1, F2 und somit zur Niederschlagsbildung kommt, der die Austrittsöffnungen 32, 33 und 34 verstopfen könnte. 35
- [0064] In der Fig. 4a ist eine vergrößerte Darstellung der den Zentral- und die Ringkanäle bildenden Rohre 35, 36 und 37 mit den dazugehörigen Austrittsöffnungen 32, 33 und 34 zu sehen. Hierbei steht das innere Rohr 37 gegenüber dem mittleren Rohr 36 und dem äußeren Rohr 35 nach außen vor. In der Fig. 4b ist dies schematisch in Seitenansicht noch einmal dargestellt. Es ergibt sich somit eine gestufte Anordnung der Enden der Rohre 35, 36 und 37. Typische Rohrabmessungen sind wie folgt: Rohrinnendurchmesser von 0,5 mm bis 5 mm, Versatz V der Rohre von 0 bis + 2 mm. 40
- [0065] Diese Anordnung begünstigt die Tropfenbildung, die in der Fig. 5 im einzelnen dargestellt ist. Die Fig. 5a bis 5d verdeutlichen die Tropfenbildung bei unterschiedlichen Strömungsgeschwindigkeiten der Fluide F1, F2 und T und bei unterschiedlichen Konzentrationen der Fluide F1, F2, bezogen auf die Menge des Trennfluides. 45
- [0066] In der Fig. 5a beträgt die Konzentration der Fluide F1 ($\text{F1: Ca}^{2+}(\text{H}_2\text{O})$) und F2 ($\text{F2: CO}_3^{2-}(\text{H}_2\text{O})$) 2 g/l, bezogen auf die Menge des Trennfluides T. Die Strömungsgeschwindigkeit für die beiden Fluide F1 und F2 beträgt jeweils 10 ml/h. Die Strömungsgeschwindigkeit des Trennfluides T liegt doppelt so hoch und beträgt 20 ml/h. Wie in der Fig. 5a zu sehen ist, entsteht ein Kontakt zwischen den Fluiden F1 und F2 erst in der Tropfenspitze des Tropfens im Reaktionsbereich. Der Kontakt führt zur sofortigen Reaktion der Fluide F1 und F2 miteinander. Im Bereich der Austrittsöffnungen dagegen findet durch das zwischen den Fluiden F1 und F2 vorhandene Trennfluid T noch keine Reaktion statt. Dadurch wird eine Verstopfung der Austrittsöffnungen wirksam verhindert. 50
- [0067] Wenn, wie in der Fig. 5b gezeigt ist, bei gleicher Strömungsgeschwindigkeit die Konzentration verdoppelt wird, dehnt sich der Reaktionsbereich 2 in Richtung der Austrittsöffnungen aus, wobei allerdings immer noch der Bereich 3 um die Austrittsöffnungen im wesentlichen durch die noch nicht vermischten Fluide F1, F2 und T gebildet wird. Insofern wird auch bei dieser Ausführungsform eine Verstopfung noch wirksam verhindert. 55
- [0068] In der Fig. 5c wurden die Strömungsgeschwindigkeiten deutlich erhöht. Dies führt zu einer Wirbelbildung, wie im Reaktionsbereich 2 zu sehen ist. Der Bereich 3 wird nach wie vor durch die noch nicht vermischten Fluide F1, F2 und T gebildet. Durch den durch die Erhöhung der Strömungsgeschwindigkeit schnelleren Tropfenabriß ist die sichtbare Niederschlagsmenge geringer. 60

[0069] In der Fig. 5d wurde gegenüber den Bedingungen in Fig. 5b lediglich die Strömungsgeschwindigkeit des Trennfluids T vergrößert, was zu einer gestreckteren Tropfenform und einem vergrößerten Bereich 3 für das Trennfluid T führt. Im Vergleich zu Fig. 5b zeigt sich bei dieser Ausführungsform, daß der Bereich der Austrittsöffnungen stärker von dem Trennfluid T umspült wird und somit eine Verstopfung durch Niederschläge aus den Reaktionen der Fluide F1 und F2 verhindert wird.

5 [0070] In der Fig. 6 ist ein Interdigitalmischer 200 dargestellt, der aus einem Mischergrundkörper 201, einem Gehäuse 202 für die Mischerkammer 206 und einem Verteilerblock 207 besteht, in dem die Anschlußrohre 203, 204, 205 für die Fluide F1, F2 und T vorgesehen sind. Im Innern des Mischergrundkörpers 201 befindet sich die Interdigitalstruktur, die derart ausgebildet ist, daß am Ausgang der Mikrokanäle der Interdigitalstruktur in der Mischerkammer 206 ein Lamellenbild vorliegt, wie dies in der Fig. 7 gezeigt ist. Die Fluidlamellen 5, 6, 7, die im Querschnitt rechteckig ausgebildet sind, liegen nebeneinander in der hier beispielhaften Reihenfolge F1, T, F2, T, F1, T, F2T. Die Breite bzw. Dicke D der Fluidlamellen 6 des Trennfluids T beträgt beispielsweise 1 µm bis 1 mm, vorzugsweise 10 bis 20 µm und ist mit der Lamellendicke der Lamellen 5 und 7 identisch. Die Dicke D der Lamellen 6 ist auf die Reaktionsfreudigkeit der Fluide F1 und F2 bzw. der damit verbundenen Diffusionseffekte abgestimmt.

10 [0071] In der Fig. 8 ist der Mischergrundkörper 201 vergrößert dargestellt, wobei dieser Grundkörper durch insgesamt neun Mischerplatten 210, 220, 230 . . . bis 290 gebildet wird, die übereinander angeordnet sind und eine entsprechende Strukturierung aufweisen, damit in der Platte 280 eine Interdigitalstruktur 285 gebildet werden kann.

[0072] In der oberen Platte 210 befinden sich die Einlässe bzw. Zuführöffnungen 211, 212, 213 für die beiden Fluide F1, F2 und T. In der darunterliegenden Mischerplatte 220 befinden sich die Zuführöffnungen 222 und 223 und die erste Verteilerkammer 221, die mit der Zuführöffnung 211 in Verbindung steht. In dieser Verteilerkammer 221 wird das zugeführte Fluid über einen breiteren Bereich verteilt, so daß das Fluid in der darunterliegenden Mischerplatte 230 in die Reihe der Verbindungsöffnungen 231 einströmen kann. Die Mischerplatte 230 besitzt die Zuführöffnung 232 und 233, die mit den Zuführöffnungen 222 und 223 in Verbindung stehen.

15 [0073] In der darunterliegenden Mischerplatte 240 mit der Zuführöffnung 243 mündet die Zuführöffnung 232 in die zweite Verteilerkammer 242 für das zweite Fluid. Die Verbindungsöffnungen 241 stehen in Verbindung mit den Verbindungsöffnungen 231 der Mischerplatte 230.

[0074] In der darunterliegenden Mischerplatte 250 sind Verbindungsöffnungen 252 für das zweite Fluid, die mit dem verbreiterten Bereich der zweiten Verteilerkammer 242 kommunizieren, sowie Verbindungsöffnungen 251 vorgesehen. Die Zuführöffnung 243 steht mit der Zuführöffnung 253 der Mischerplatte 250 in Verbindung und mündet in die darunterliegende dritte Verteilerkammer 263 der Mischerplatte 260. Dort sind neben der dritten Verteilerkammer 263 zwei Reihen von Verbindungsöffnungen 261, 262 für die übrigen Fluide vorgesehen.

[0075] Die darunterliegende Mischerplatte 270 weist drei Reihen von Verbindungsöffnungen 271, 272 und 273 auf, die mit den entsprechenden Mikrokanälen 281, 282, 283, die die Interdigitalstruktur 285 bilden, in der Mischerplatte 280 verbunden ist. Am Austrittsende der Interdigitalstruktur 285 befindet sich die Mischerkammer 206. Darunter ist die Abschlußplatte 290 angeordnet, die keinerlei Strukturen aufweist.

20 [0076] In der Fig. 9 ist diese Interdigitalstruktur 285 vergrößert dargestellt. Es sind Kanäle 281 für das Fluid F1, Kanäle 282 für das Fluid F2 und Kanäle 283 für das Trennfluid T vorgesehen. Die jeweiligen Enden dieser Kanäle stehen mit den entsprechenden Verbindungsöffnungen 271, 272 und 273 der darüberliegenden Mischerplatte 270 in Verbindung. Die Mikrokanäle 283 sind jeweils zwischen den Mikrokanälen 281 und 282 der Fluide F1 und F2 angeordnet, so daß in der Mischerkammer 208 Lamellen gebildet werden, die jeweils zwischen den Fluidlamellen F1 und F2 Trennlamellen des Trennfluids T vorsehen. Typische Mikrokanalbreiten sind 20 µm bis 500 µm.

Klassen von organischen Reaktionen mit Niederschlägen

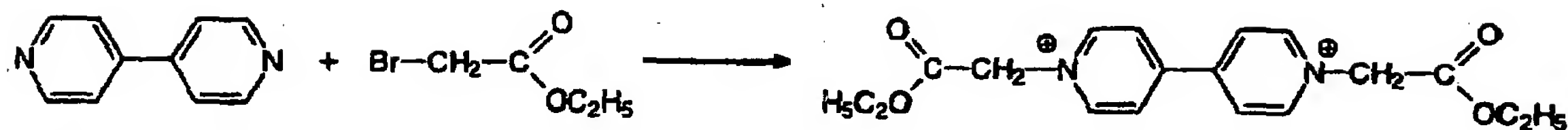
45 [0077] Viele organische Reaktionen führen zur Ausbildung von Niederschlägen, entweder als Neben- oder Hauptprodukt oder oftmals in Form von Zusätzen, wie z. B. Hilfsbasen, die die Reaktion beschleunigen. Vor allem in letztem Fall wird hierbei oftmals eine ionische Spezies gebildet, die in den häufig verwendeten wenig polaren oder unpolaren Lösungsmitteln ausfällt. Ebenfalls zur Bildung von Niederschlägen führt die Existenz ionischer Spezies bei metallorganischen Reaktionen, die entweder als Edukt eingesetzt werden oder als Zwischenstufe während einer Reaktion gebildet werden.

Testreaktionen für Fouling-Anfälligkeit von Mikromischern

55 [0078] Es wurden zur Austestung der Fouling-Anfälligkeit des Mikrovermischers drei Reaktionen ausgewählt. Die erste Reaktion, die Quaternisierung eines Bypridyl-Derivats, führt zu nahezu vollständiger Ausfällung, allerdings mit einer gewissen Induktionszeit, je nach Lösungsmittel und Temperatur. Eine Reaktionsführung in konventionellen Mikromischern/-reaktoren verbietet sich daher. Die zweite Reaktion, die Amidierung von Acetylchlorid mit n-Butylamin in Gegenwart von Triethylamin, führt unmittelbar nach Kontakt der Fluide, im Bereich weniger Millisekunden bei effizienter Mischung, zu vollständiger Ausfällung. Im letzteren Fall wurde eine bewußt hohe, nahezu 1 molare Lösung gewählt (technisch und im Labor üblich sind Konzentrationen im Bereich 10^{-2} –1 mol/l). Übliche Mikromischer, wie z. B. der Interdigital-Mikromischer, verstopfen unter diesen Bedingungen unmittelbar nach Anschalten des Prozesses, d. h. in weniger als einer Sekunde. Die dritte Reaktion, die Bildung von Calciumcarbonat, ist bekanntermaßen ein schnell ablaufender Prozeß, der erfahrungsgemäß zu Verstopfungen in Mikromischern führt.

60 [0079] Alle Versuche wurden jeweils, soweit nicht anders spezifiziert, mit und ohne Gegenwart eines Rohrreaktors gemacht. Der Rohrreaktor war ein (nicht temperiertes) Glasrohr von 15 cm Länge und einem trichterförmigen Einlaß am Reaktoreingang. Das Rohrende befand sich unmittelbar (ca. 2 cm) über einem Auffangkolben, der die Reaktionslösung sammelte.

Quaternisierung von 4,4'-Bipyridyl mit Ethylbromoacetat



[0080] 4,4'-Bipyridyl ($c = 0,6 \text{ mol/l}$ in Aceton) (Fluid 1), Ethylbromoacetat ($c = 1,4 \text{ mol/l}$ in Aceton) (Fluid F2) und ein Trennfluid aus Aceton (Fluid T) werden in einen Mikrovermischer gemäß der Fig. 2 kontaktiert (konzentrische Ringströme, 3-Fluid-Düse mit drei ineinander gestellten Rohren mit Durchmessern von 1,5, 3 und 4 mm, respektive Ringströmen einer Stärke von jeweils $200 \mu\text{m}$ und einem Kernstrom mit Durchmesser $1,5 \text{ mm}$). Die Reaktionstemperatur betrug 22°C . Die Reaktionslösung wurde nach dem Kontaktieren entweder als Tropfen oder als Strahl in einen Kolben (mit oder ohne Glasrohr-Verbindung, wie oben spezifiziert) fallengelassen (Distanz Mischer-Kolben: 20 cm ; Distanz Rohrkolben 2 cm). Der dort erhaltene Niederschlag des quaternisierten Reaktionsprodukts wird abgesaugt und mit etwas Aceton nachgespült. Der so erhaltene Niederschlag wird im Trockenschrank getrocknet und die Ausbeute durch Wiegen bestimmt. Das Produkt wird mittels NMR identifiziert.

[0081] Die Volumenströme aller drei Fluide wurden variiert. Dabei wurden folgende Kombinationen untersucht:
Vol.-Strom F1 (Bipyridyl): Vol.-Strom T (Trennschicht): Vol.-Strom F2 (Ethylbromoacetat):

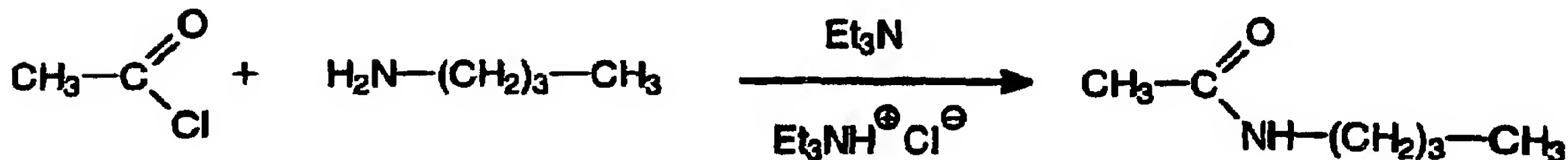
100:100:100; 10:10:10; 500:500:500;

100:500:100; 10:50:10;

[0082] In jeweils allen Fällen konnte eine stabile Operation des Mikrovischers von mindestens acht Stunden erreicht werden. Die dabei erreichten Ausbeuten betrugen zwischen 65% und 70% .

[0083] Normalerweise wird die Reaktion bei 60°C gefahren und die Reaktionszeit beträgt mehrere Stunden. Infolgedessen ist bei einer Versuchsdurchführung mit dem erfindungsgemäßen Mischer bei 60°C aber ohne Reaktionszeiten von mehreren Stunden eine noch höhere Ausbeute als oben angegeben zu erwarten.

Amidierung von Acetylchlorid (F1) mit n-Butylamin (F2) in Gegenwart von Triethylamin (T)



[0084] In einem ersten Versuch wird Acetylchlorid ($c = 0,79 \text{ mol/l}$ in THF; Fluka p. a.) mit n-Butylamin ($c = 0,80 \text{ mol/l}$ in THF; Acros, $99,8\%$) in Gegenwart von Triethylamin ($c = 0,80 \text{ mol/l}$ in THF; Aldrich, 99%) in einem Mikrovermischer gemäß Fig. 2 kontaktiert (konzentrische Ringströme, 3-Fluid-Düse mit drei ineinander gestellten Rohren mit Durchmessern $1,5$, 3 und 4 mm , respektive Ringströmen einer Stärke von jeweils $200 \mu\text{m}$ und einem Kernstrom mit Durchmesser $1,5 \text{ mm}$).

[0085] Als Trennfluid wurde Tetrahydrofuran verwendet.

[0086] Die Reaktionstemperatur betrug 22°C . Die Reaktionslösung wird nach dem Kontaktieren entweder als Tropfen oder als Strahl in einen Kolben fallengelassen. Im Kolben ist Wasser vorgelegt, um durch Hydrolyse das Edukt Acetylchlorid in die nicht mehr reaktive Essigsäure umzuwandeln und damit die Reaktion zu stoppen. Die Phasen werden anschließend getrennt, die Wasserphase nochmals mit THF extrahiert (da sie teilweise Produkt enthält). Die vereinigten THF-Phasen werden über Na_2SO_4 getrocknet, abgesaugt und unter Vakuum (zuletzt 25 mbar) einrotiert. Dabei ausfallende Reste von Triethylammoniumchlorid werden abgesaugt und das Filtrat wird noch mal einrotiert. Eine FTIR Messung (Nicolet) dient zur Bestimmung der Ausbeute des so erhaltenen flüssigen Produkts. Hierfür wird das Produkt zwischen zwei NaCl -Scheiben gebracht und in einem FTIR-Spektrometer Magna-IRTM 750 der Firma Nicolet gemessen (Software-Programm Omnic E.S.P Version 5.2).

[0087] In einem zweiten Versuch wurde die gleiche Prozedur mit veränderter Eduktkonzentration durchgeführt: c (Acetylchlorid) = $0,198 \text{ mol/l}$, c (n-Butylamin) = $0,200 \text{ mol/l}$, c (Triethylamin) = $0,200 \text{ mol/l}$.

[0088] Sowohl beim ersten wie auch beim zweiten Versuch wurden die Volumenströme aller drei Fluide variiert. Dabei wurden folgende Kombinationen untersucht:

[0089] Vol.-Strom (Acetylchlorid): Vol.-Strom (Trennschicht): Vol.-Strom (n-Butylamin):

5:25:5; 5:100:5; 5:200:5; 5:250:5;

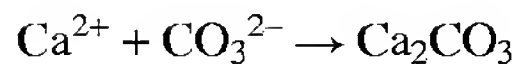
25:250:25; 50:150:50; 300:600:300; 300:1000:300;

[0090] In jeweils allen Fällen konnte eine stabile Operation des Mikrovischers von mindestens einer Stunde erreicht werden. Als besonders vorteilhaft erwies sich die Kombination $5 : 250 : 5$, die drei Stunden lang betrieben werden konnte. Die dabei erreichten Ausbeuten betrugen zwischen 87% und 100% . Das in Fig. 10 gezeigte Diagramm zeigt ein IR-Spektrum von Essigsäure-n-butylamid, aus dem zu entnehmen ist, wie die Banden den zugehörigen funktionellen Gruppen zuzuordnen sind. Diese qualitative Auswertung zeigt, daß diese Zuordnung im Einklang mit der zu erwartenden Molekülformel des Produkts, des Essigsäure-n-butylamids, ist. Das in Fig. 11 gezeigte Diagramm zeigt das Ergebnis eines Langzeitversuchs bei Volumenströmen von $5 : 250 : 5$. Eine quantitative Auswertung dieses Spektrums ergibt eine Ausbeute von nahezu 100% . Niedrige Ausbeuten wurden vor allem bei den hohen Volumenströmen erhalten. Durch eine

weitere Optimierung der Mischgeometrie und der Prozeßbedingungen (vor allem der Eduktkonzentration) ist ein ganz-tägiger Betrieb wahrscheinlich. Damit sind Grundvoraussetzungen geschaffen, um diese Reaktion auch im Labor untersuchen zu können.

5

Bildung von Calciumcarbonat



- [0091]** Calciumnitrat (c = 40 mmol/l in Wasser; $\text{CaNO}_3 \times 4 \text{H}_2\text{O}$, Fluka Chemie AG) wird mit Kaliumcarbonat (c = 40 mmol/l in Wasser; anhydr., Fluka Chemie AG) und einer Trennschicht aus Wasser im Mikrovermischer kontaktiert (konzentrische Ringströme, 3-Fluid-Düse mit drei ineinander gestellten Rohren mit Durchmessern von 1,5, 3 und 4 mm, respektive Ringströmen einer Stärke von jeweils 200 µm und einem Kernstrom mit Durchmesser 1,5 mm). Die Reaktionstemperatur betrug 22°C. Die Reaktionslösung wurde nach dem Kontaktieren als Tropfen in ein Aufnahmefluid, Dodekan, gegeben. Von diesem Aufnahmefluid wurden die Tropfen mit dem Dodekan in einen Rohrreaktor geleitet.
- [0092]** Ein stabiler Betrieb konnte für 8 Stunden erreicht werden.

Bezugszeichen

- 1 Tropfen
- 20 2 Reaktionsbereich
- 3 Trennfluidbereich
- 5 Lamelle
- 6 Lamelle
- 7 Lamelle
- 25 20 Mikrovermischer
- 21 Mischergrundkörper
- 22 Gehäuse der Mischerkammer
- 23 Fluidanschluß
- 24 Fluidanschluß
- 30 25 Fluidanschluß
- 26 Mischerkammer
- 27 Einlaß für Aufnahmefluid A
- 28a–d Platte
- 29 Zentralkanal
- 35 30 Ringkanal
- 31 Ringkanal
- 32 kreisförmige Austrittsöffnung
- 33 ringförmige Austrittsöffnung
- 34 ringförmige Austrittsöffnung
- 40 35 Rohr
- 36 Rohr
- 37 Rohr
- 38 Auslaß
- 200 Interdigitalvermischer
- 45 201 Mischergrundkörper
- 202 Gehäuse für Mischerkammer
- 203 Anschlußrohr für Fluid F1
- 204 Anschlußrohr für Fluid F2
- 205 Anschlußrohr für Fluid T
- 50 206 Mischerkammer
- 207 Verteilerblock
- 210 Mischerplatte
- 211 Zuführöffnung
- 212 Zuführöffnung
- 55 213 Zuführöffnung
- 220 Mischerplatte
- 221 erste Verteilerkammer
- 222 Zuführöffnung
- 223 Zuführöffnung
- 60 230 Mischerplatte
- 231 Verbindungsöffnung
- 232 Zuführöffnung
- 233 Zuführöffnung
- 240 Mischerplatte
- 65 241 Verbindungsöffnung
- 242 zweite Verteilerkammer
- 243 Zuführöffnung
- 250 Mischerplatte

251 Verbindungsöffnung	
252 Verbindungsöffnung	
253 Zuführöffnung	
260 Mischerplatte	
261 Verbindungsöffnung	5
262 Verbindungsöffnung	
263 dritte Verteilerkammer	
270 Mischerplatte	
271 Verbindungsöffnung	
272 Verbindungsöffnung	10
273 Verbindungsöffnung	
280 Mischerplatte	
281 Mikrokanäle für Fluid F1	
282 Mikrokanäle für Fluid F2	
283 Mikrokanäle für Fluid T	15
285 Interdigitalstruktur	
290 Mischerplatte	

Patentansprüche

- | | |
|---|----|
| 1. Verfahren zur Durchführung chemischer Prozesse, bei dem mindestens zwei unter Ausbildung von Niederschlägen oder Suspensionen reagierende Fluide F1, F2 in einem Fluidkanäle aufweisenden Mikrovermischer zusammengeführt werden, dadurch gekennzeichnet , daß die mindestens zwei Fluide F1, F2 durch ein Trennfluid T getrennt voneinander in eine Mischerkammer oder eine Reaktionsstrecke eingeleitet werden. | 20 |
| 2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Fluide F1, F2, T als konzentrische Fluidströme ausgetragen werden. | 25 |
| 3. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß die Strömungsgeschwindigkeiten der konzentrischen Fluidströme unterschiedlich sind. | |
| 4. Verfahren nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß die Strömungsgeschwindigkeit des Trennfluids T größer als die Strömungsgeschwindigkeiten der Fluide F1, F2 ist. | 30 |
| 5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß die Strömungsgeschwindigkeit der konzentrischen Fluide zwischen 1 und 1000 ml/h gewählt wird. | |
| 6. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Fluide F1, F2 und T als Fluidlamellen ausgetragen werden, wobei die Fluidlamellen der Fluide F1, F2 alternierend angeordnet und jeweils durch eine Fluidlamelle des Trennfluids T voneinander getrennt sind. | 35 |
| 7. Verfahren nach einem der Ansprüche 2 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß die Dicke D der konzentrischen Fluidströme oder der Fluidlamellen der Fluide F1, F2, T beim Einleiten derart gewählt wird, daß bis auf Diffusionseffekte keine Vermischung der Fluide F1, F2 und T stattfindet. | |
| 8. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß beim Einleiten der Fluide F1, F2, T Tropfen oder ein kontinuierlicher Fluidstrahl als Fluid-Ringstrahl oder Fluid-Lamellenstrahl gebildet werden/wird. | 40 |
| 9. Verfahren nach Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, daß die Tropfen oder der Fluidstrahl in ein mit den Fluiden F1, F2 nicht mischbares Aufnahmefluid A ausgetragen werden. | |
| 10. Verfahren nach Anspruch 8 oder 9, dadurch gekennzeichnet, daß die Tropfen oder die durch das Aufnahmefluid A getrennten Tropfen in einer Reaktionsstrecke so lange geführt werden, bis die Reaktion in den Tropfen zwischen den Fluiden F1, F2 weitgehend beendet ist. | 45 |
| 11. Verfahren nach einem der Ansprüche 8 oder 9, dadurch gekennzeichnet, daß der Fluidstrahl in einer Reaktionsstrecke so lange geführt wird, bis die Reaktionen zwischen den Fluiden F1, F2 unter Auflösung der Fluidlamelle/-lamellen oder des/der konzentrischen Fluidstroms/ströme weitgehend beendet ist. | |
| 12. Verfahren nach einem der Ansprüche 10 oder 11, dadurch gekennzeichnet, daß sich in der Reaktionsstrecke durch fortschreitende Diffusion der Fluidlamellen oder konzentrischen Fluidströme die Fluide F1, F2 zunehmend vermischen. | 50 |
| 13. Verfahren nach einem der Ansprüche 10 bis 12, dadurch gekennzeichnet, daß als Reaktionsstrecke ein Rohr verwendet wird. | |
| 14. Verfahren nach Anspruch 13, dadurch gekennzeichnet, daß ein Rohr mit rechteckigem Querschnitt verwendet wird. | 55 |
| 15. Verfahren nach einem der Ansprüche 9 bis 14, dadurch gekennzeichnet, daß das Aufnahmefluid A ein mit den Fluiden F1, F2 und T nicht mischbares Fluid ist, insbesondere ein unpolares, organisches Lösungsmittel und besonders bevorzugt eine Cyklo- oder n-Alkan, wie beispielsweise Cyklohexan, Hexan, Oktan, Dekan oder Dodekan. | |
| 16. Verfahren nach einem der Ansprüche 9 bis 14, dadurch gekennzeichnet, daß das Aufnahmefluid A ein polares mit den Flüssigkeiten F1 und F2 nicht mischbares Fluid ist, wenn die Fluide F1, F2 unpolare Flüssigkeiten sind. | 60 |
| 17. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 16, dadurch gekennzeichnet, daß das Trennfluid T mit den Fluiden F1, T2 mischbar ist. | |
| 18. Verfahren nach einem der Ansprüche 10 bis 17, dadurch gekennzeichnet, daß das Reaktionsprodukt, der Niederschlag und/oder die Suspension am Ende der Reaktionsstrecke aufgefangen und das Reaktionsprodukt vom Niederschlag oder den festen Bestandteilen der Suspension abgetrennt wird. | 65 |
| 19. Vorrichtung zur Durchführung chemischer Prozesse, bei denen mindestens zwei Fluide F1, F2 unter Ausbildung von Niederschlag oder Suspensionen miteinander reagieren, mit einem Mikrovermischer, der Zuleitungen für Fluide aufweist, die über Mikrokanäle mit in die Mischerkammer mündenden Austrittsöffnungen verbunden sind, | |

dadurch gekennzeichnet, daß der Mikrovermischer (20, 200) mindestens drei Fluidanschlüsse (23–25, 203–205) mit mindestens drei Mikrokanälen (29–31, 281–283) für die Fluide F1, F2 und für ein Trennfluid T aufweist, wobei zwischen den Austrittsöffnungen der Mikrokanäle für die Fluide F1, F2 jeweils eine Austrittsöffnung für das Trennfluid T angeordnet ist.

5 20. Vorrichtung nach Anspruch 19, dadurch gekennzeichnet, daß die Austrittsöffnungen (32, 33, 34) konzentrisch angeordnet sind.

21. Vorrichtung nach Anspruch 19 oder 20, dadurch gekennzeichnet, daß eine zentrale Austrittsöffnung (32) von mindestens zwei ringförmigen Austrittsöffnungen (33, 34) umgeben ist.

10 22. Vorrichtung nach Anspruch 21, dadurch gekennzeichnet, daß die ringförmigen Austrittsöffnungen (33, 34) gegenüber der kreisförmigen Austrittsöffnung (32) zurückversetzt angeordnet ist.

23. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 20 bis 22, dadurch gekennzeichnet, daß alle Austrittsöffnungen (32–34), beginnend mit der inneren Austrittsöffnung (32), zueinander stufenweise zurückversetzt sind.

15 24. Vorrichtung nach Anspruch 19, dadurch gekennzeichnet, daß der Mikrovermischer (200) ein Interdigitalvermischer mit mindestens drei Mikrokanalgruppen für die Fluide F1, F2, T ist, wobei die Mikrokanäle (281–283) der drei Gruppen alternierend nebeneinander angeordnet sind.

25. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 19 bis 24, dadurch gekennzeichnet, daß die Mischerkammer (26, 206) ein Rohrreaktor ist.

26. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 19 bis 23, dadurch gekennzeichnet, daß an die Mischerkammer (26, 206) ein Rohrreaktor angeschlossen ist.

20 27. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 25 oder 26, dadurch gekennzeichnet, daß am Ausgang des Rohrreaktors ein Separator angeschlossen ist.

28. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 25 bis 27, dadurch gekennzeichnet, daß der Rohrreaktor mit einer Heiz- und/oder Kühleinrichtung versehen ist.

25 29. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 25 bis 28, dadurch gekennzeichnet, daß der Rohrreaktor Abschnitte mit unterschiedlichen Querschnittsgrößen und/oder Querschnittsformen aufweist.

Hierzu 12 Seite(n) Zeichnungen

30

35

40

45

50

55

60

65

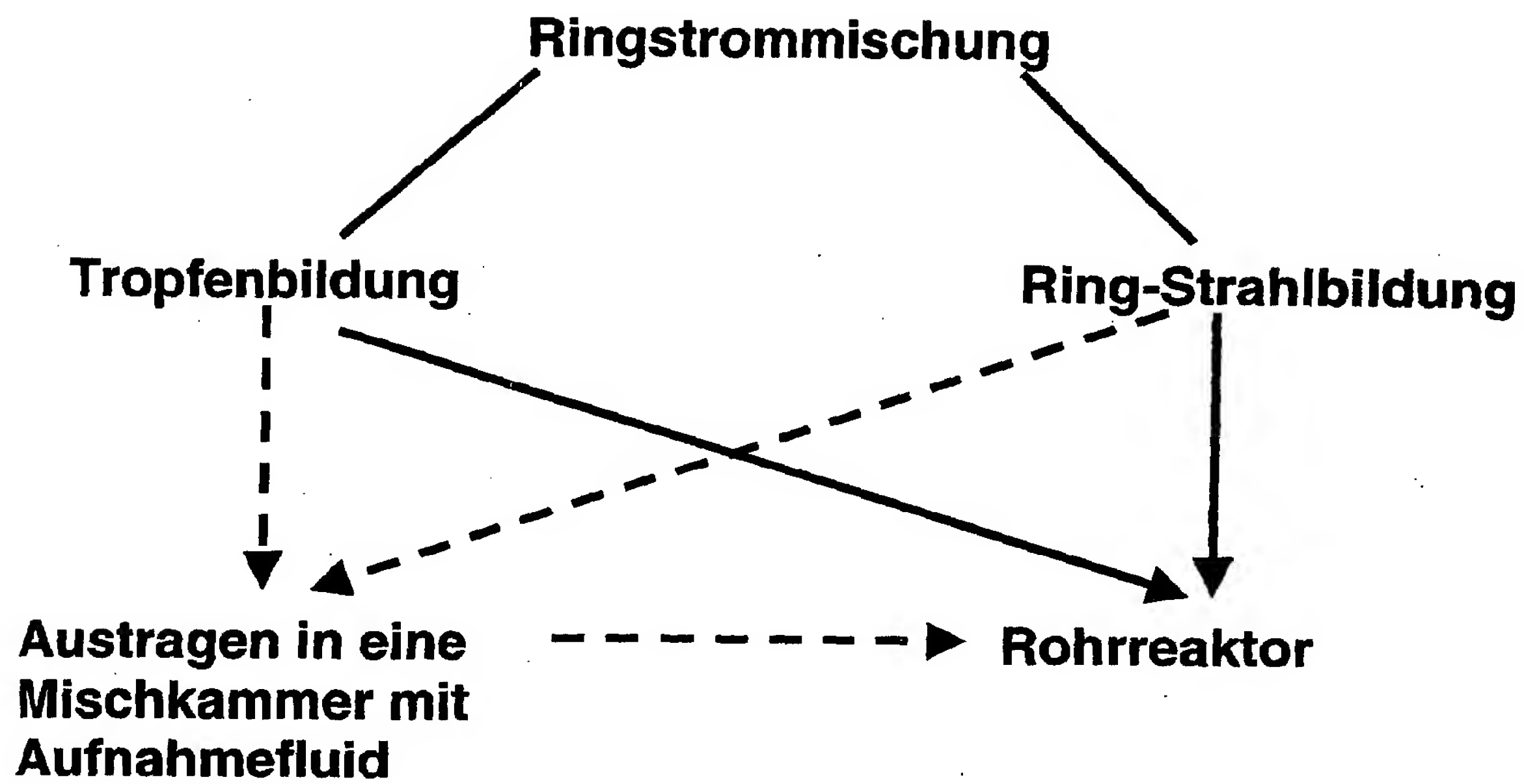


Fig. 1a

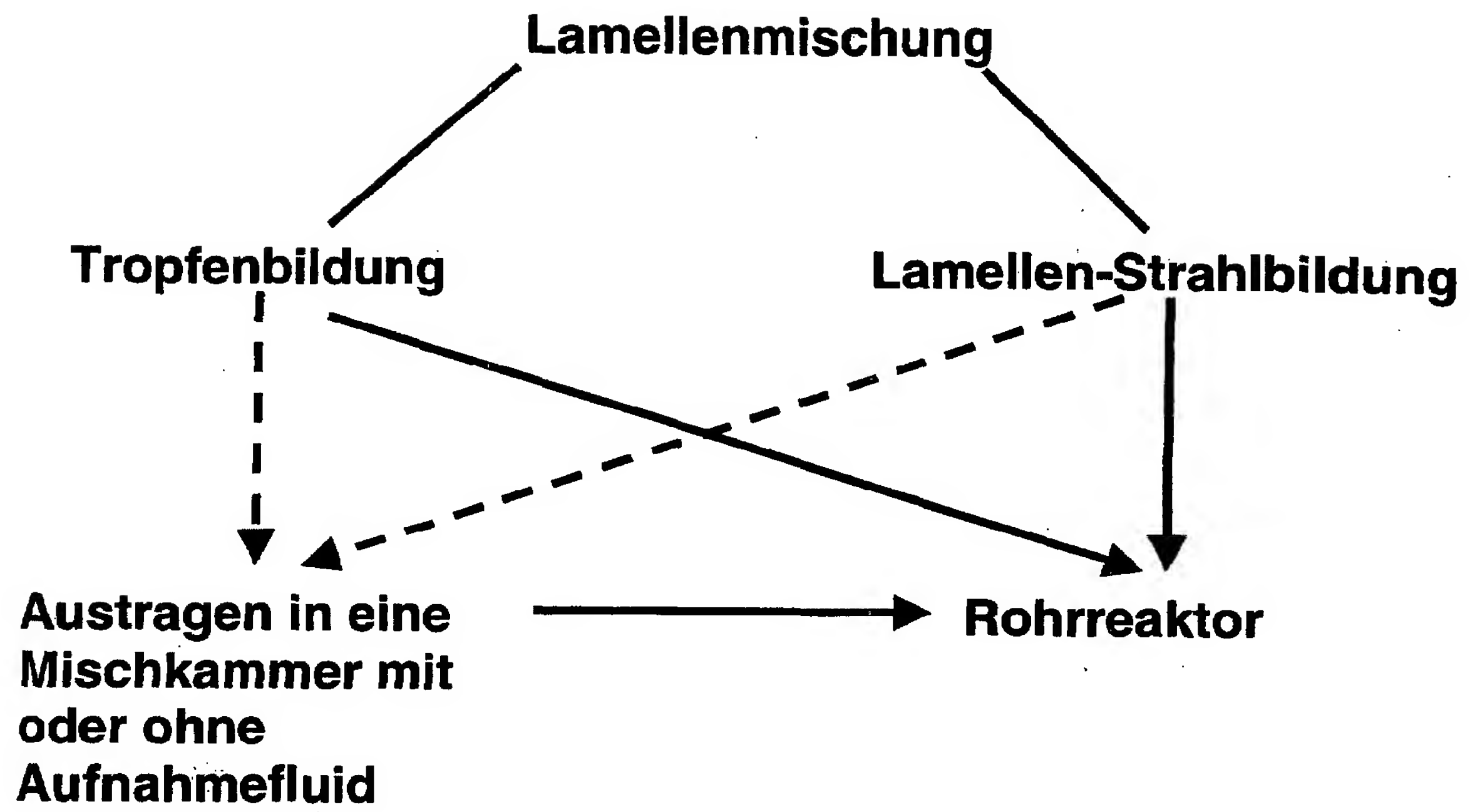


Fig. 1b

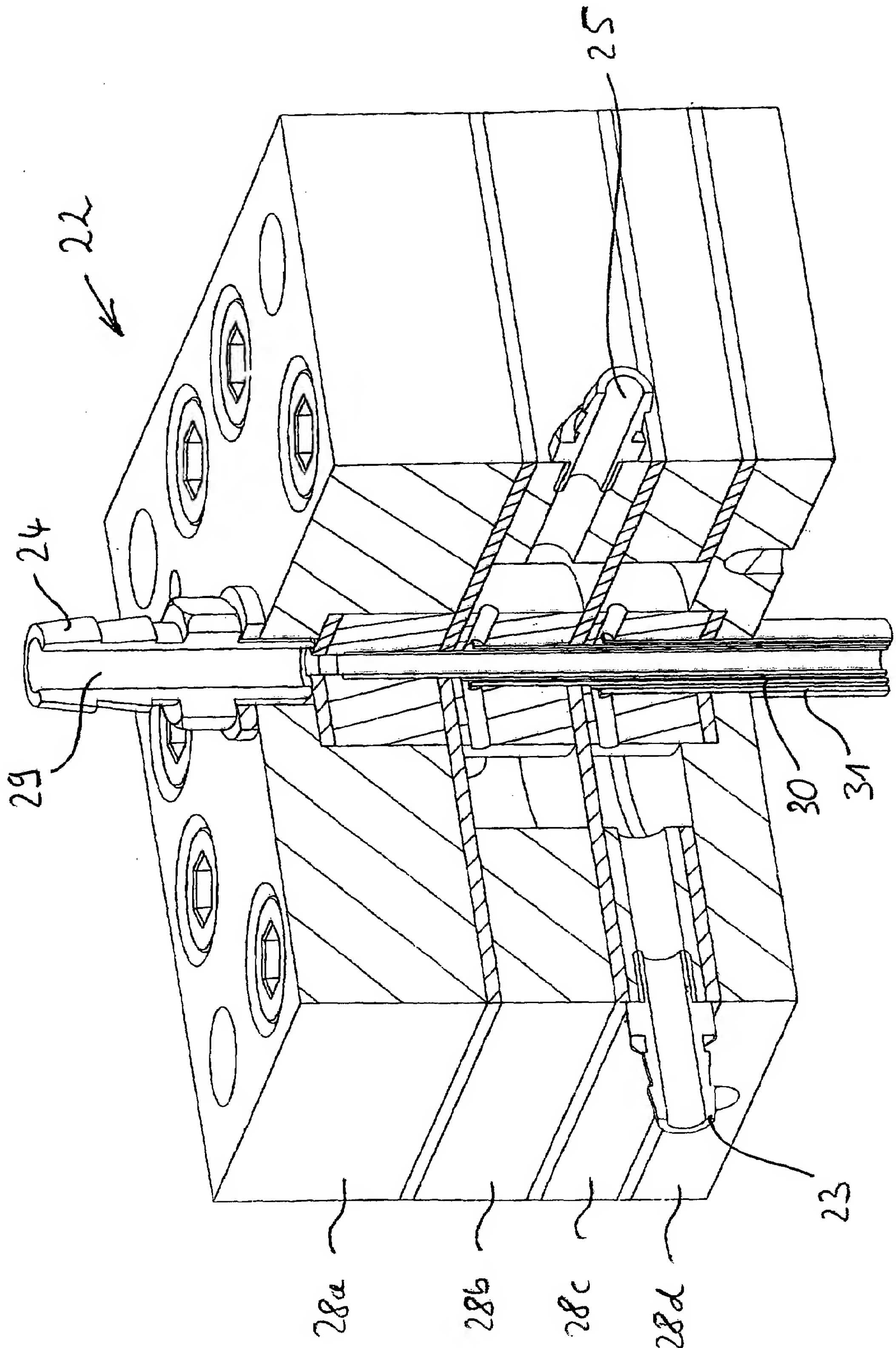


Fig. 2

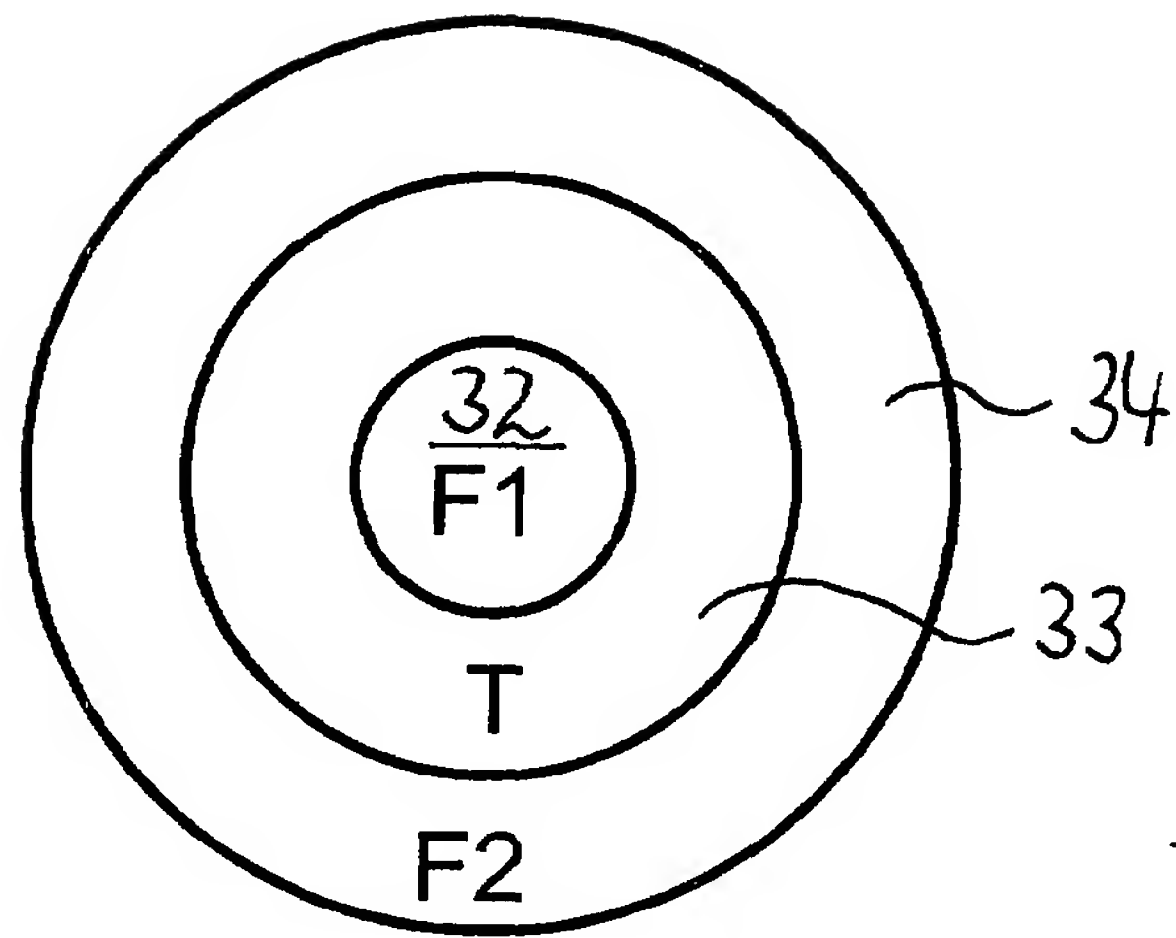


Fig. 3

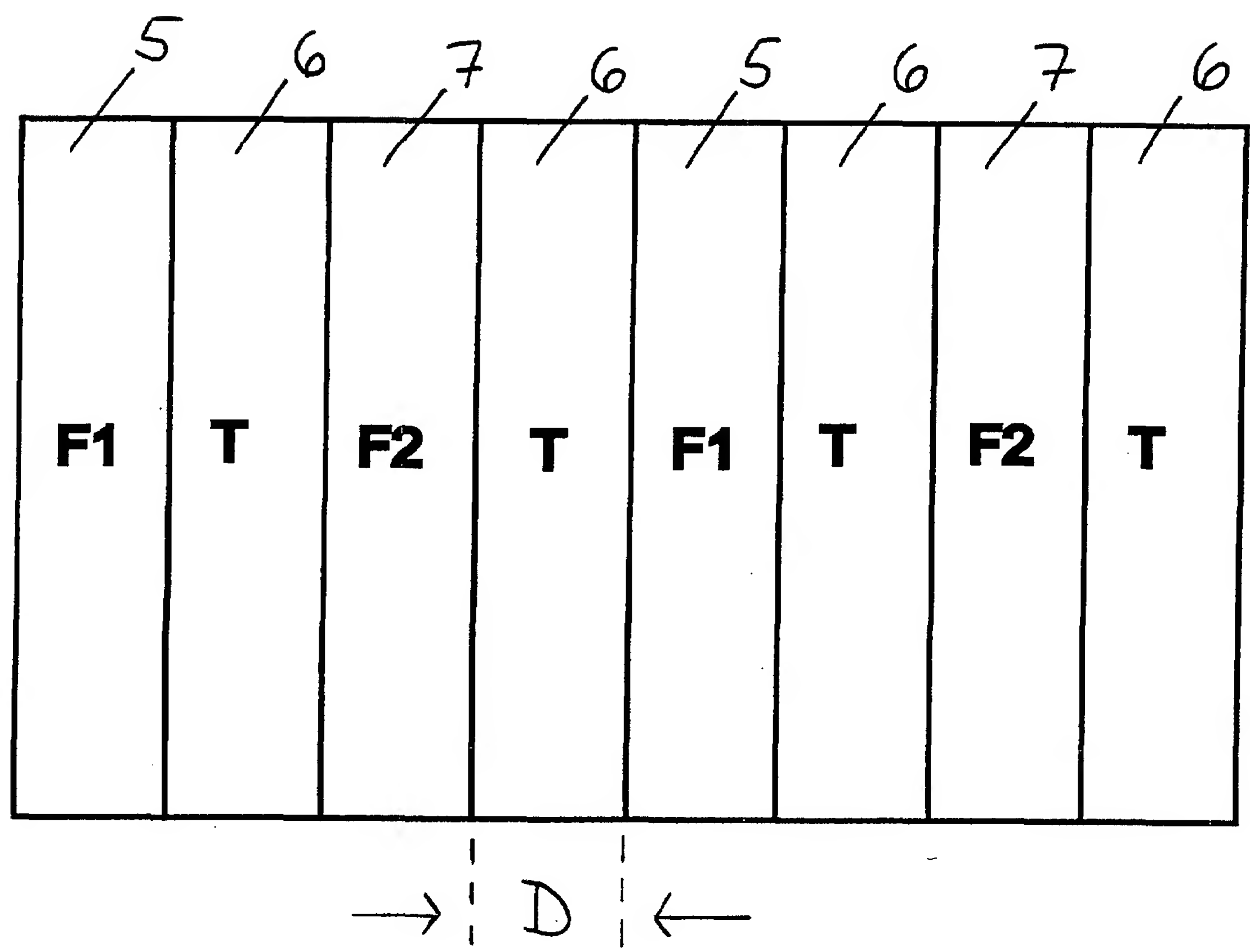


Fig. 7

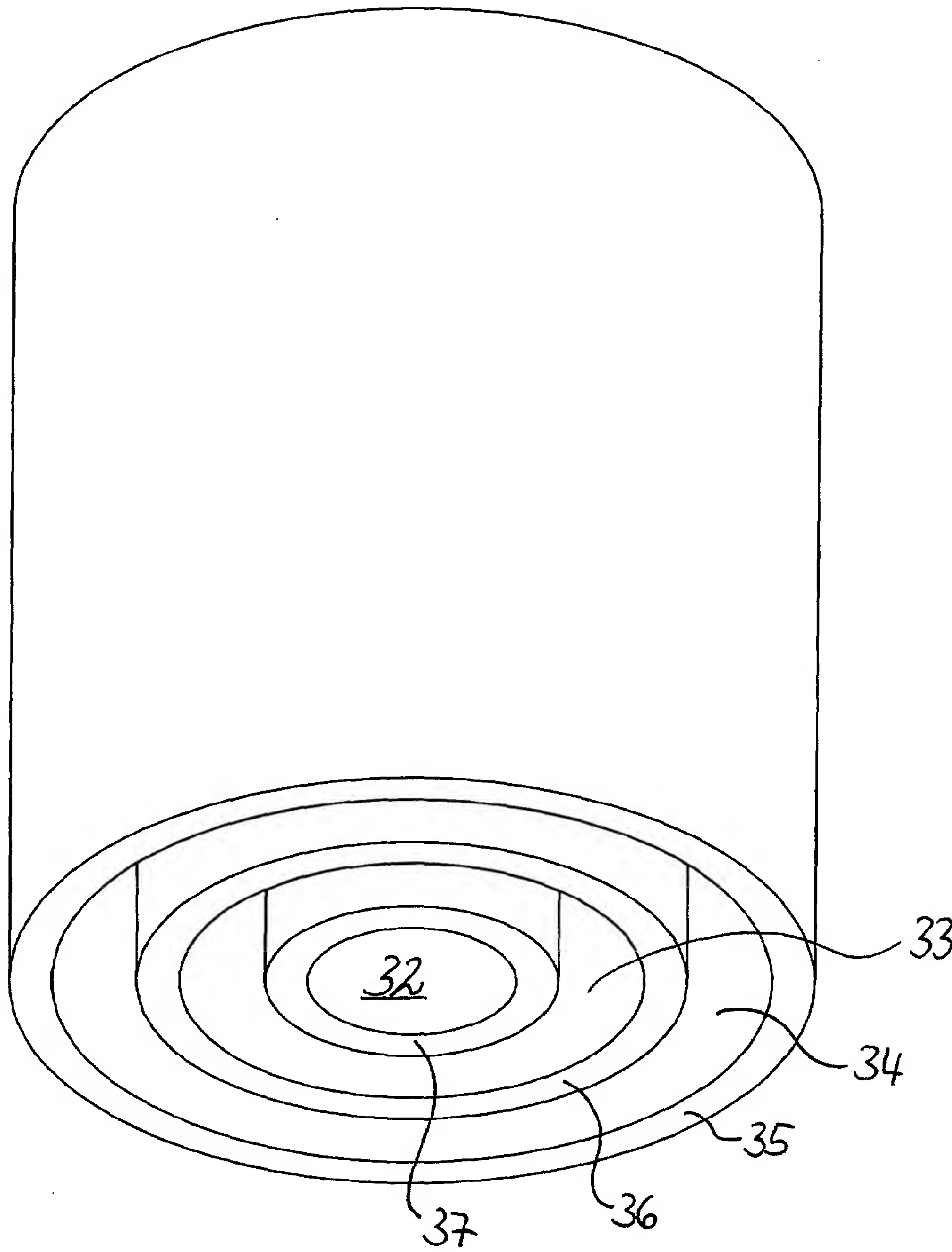


Fig. 4a

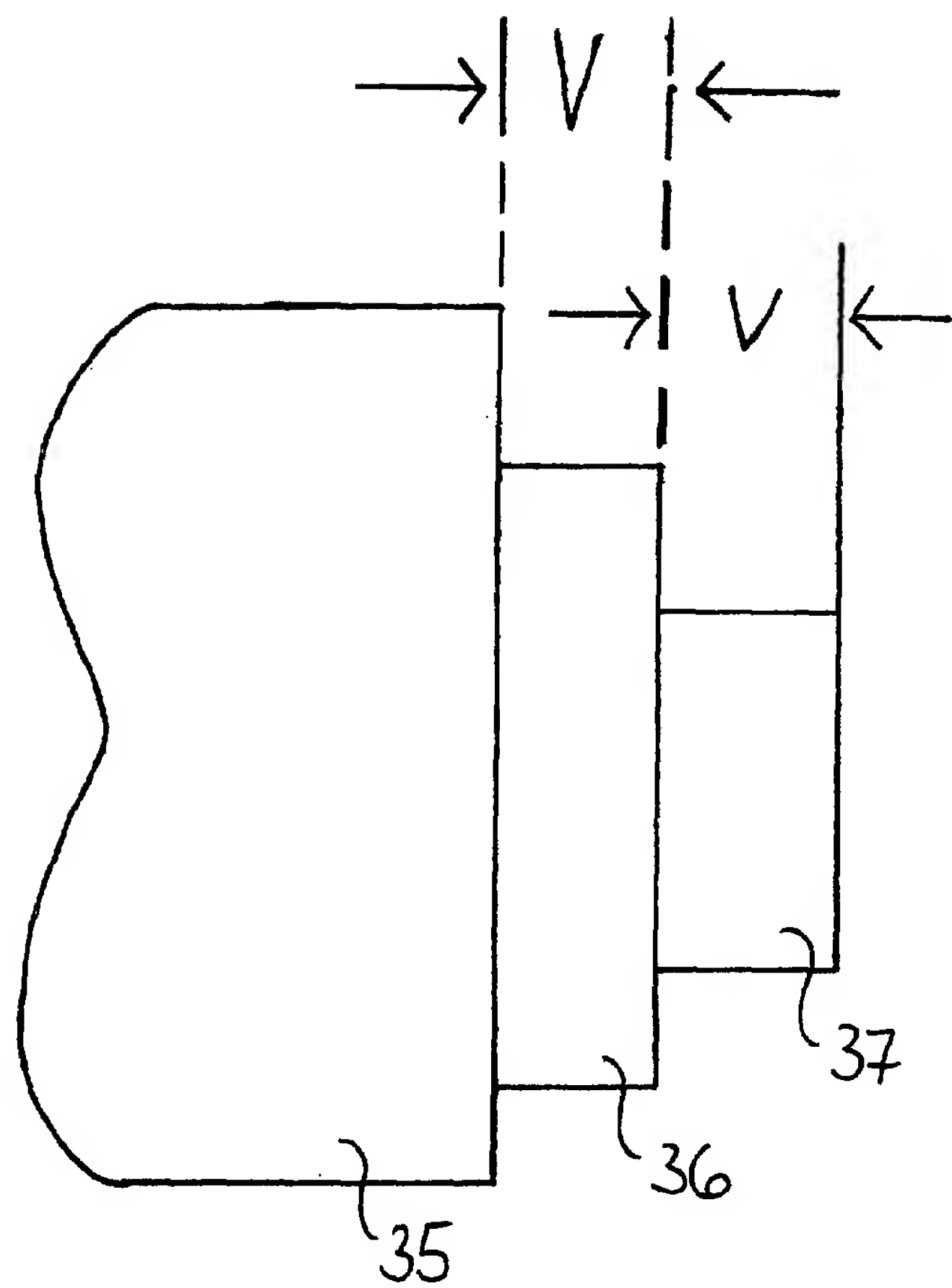


Fig. 4b

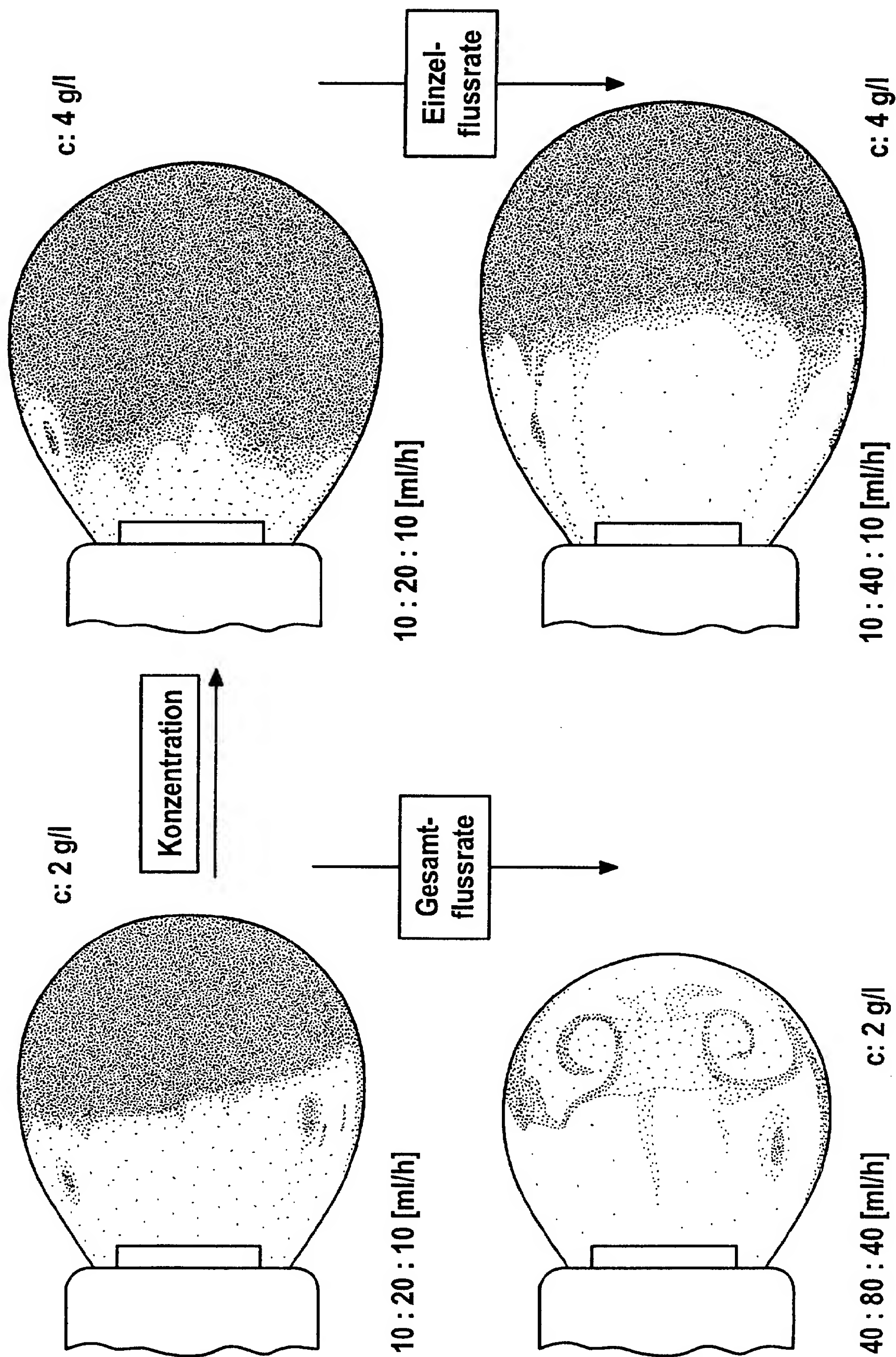


FIG. 5

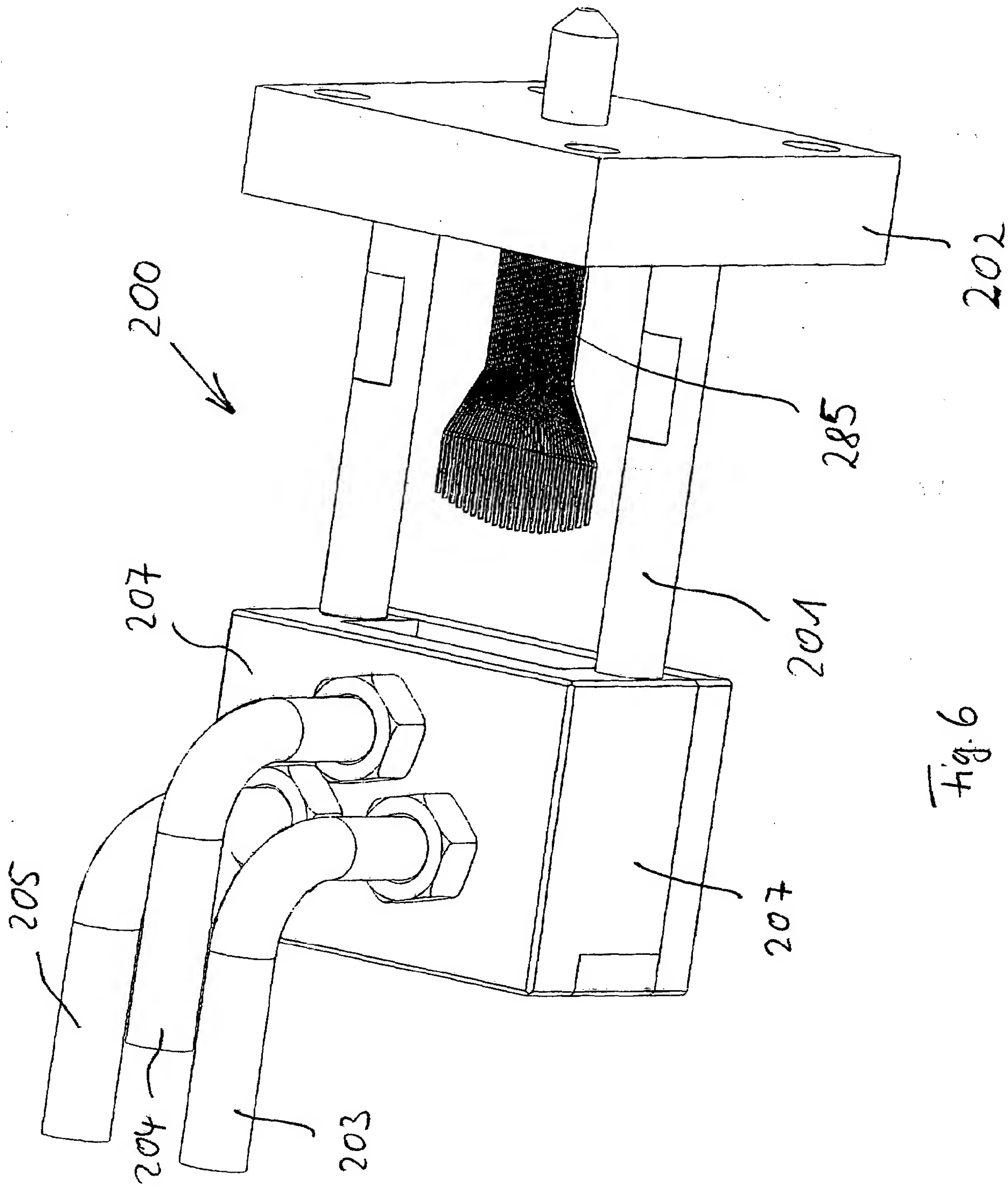


Fig. 6

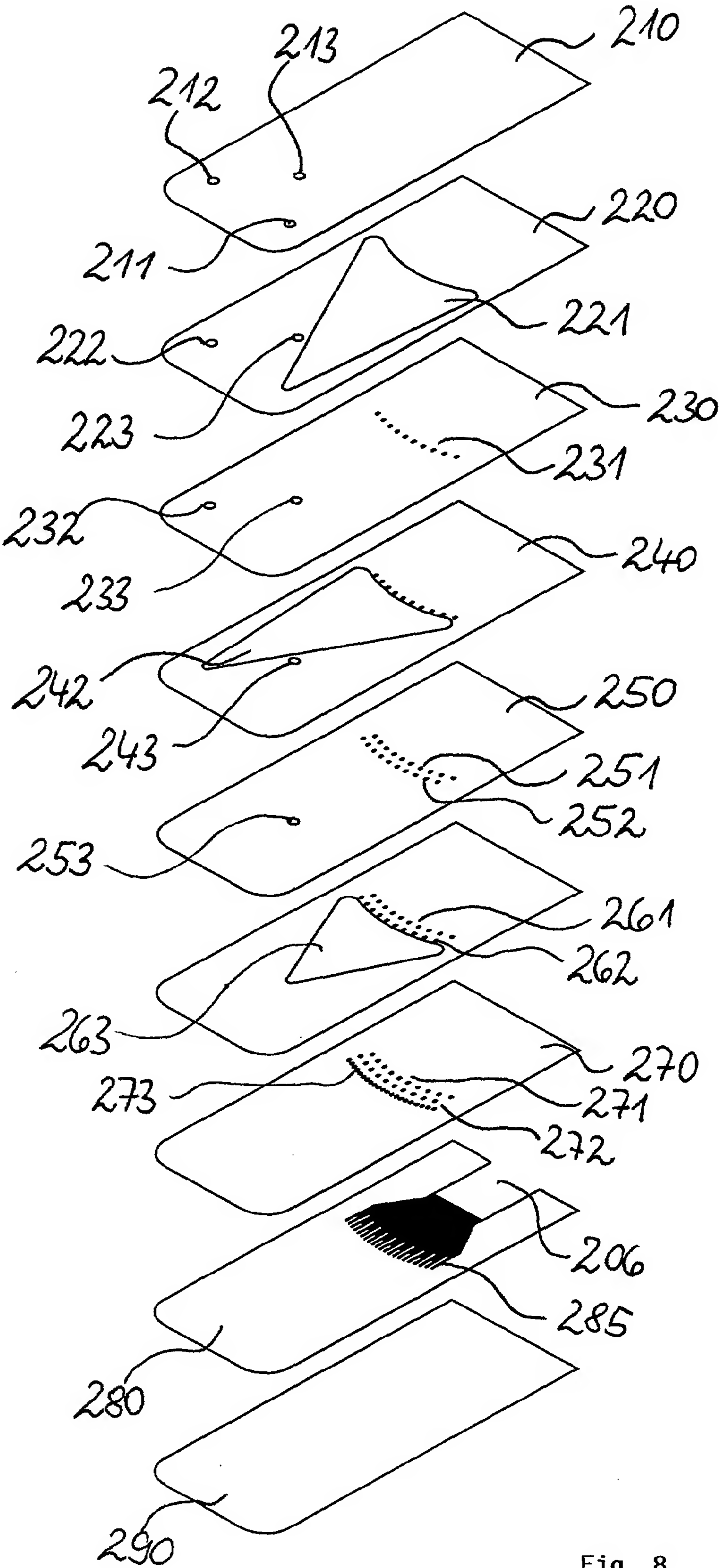


Fig. 8

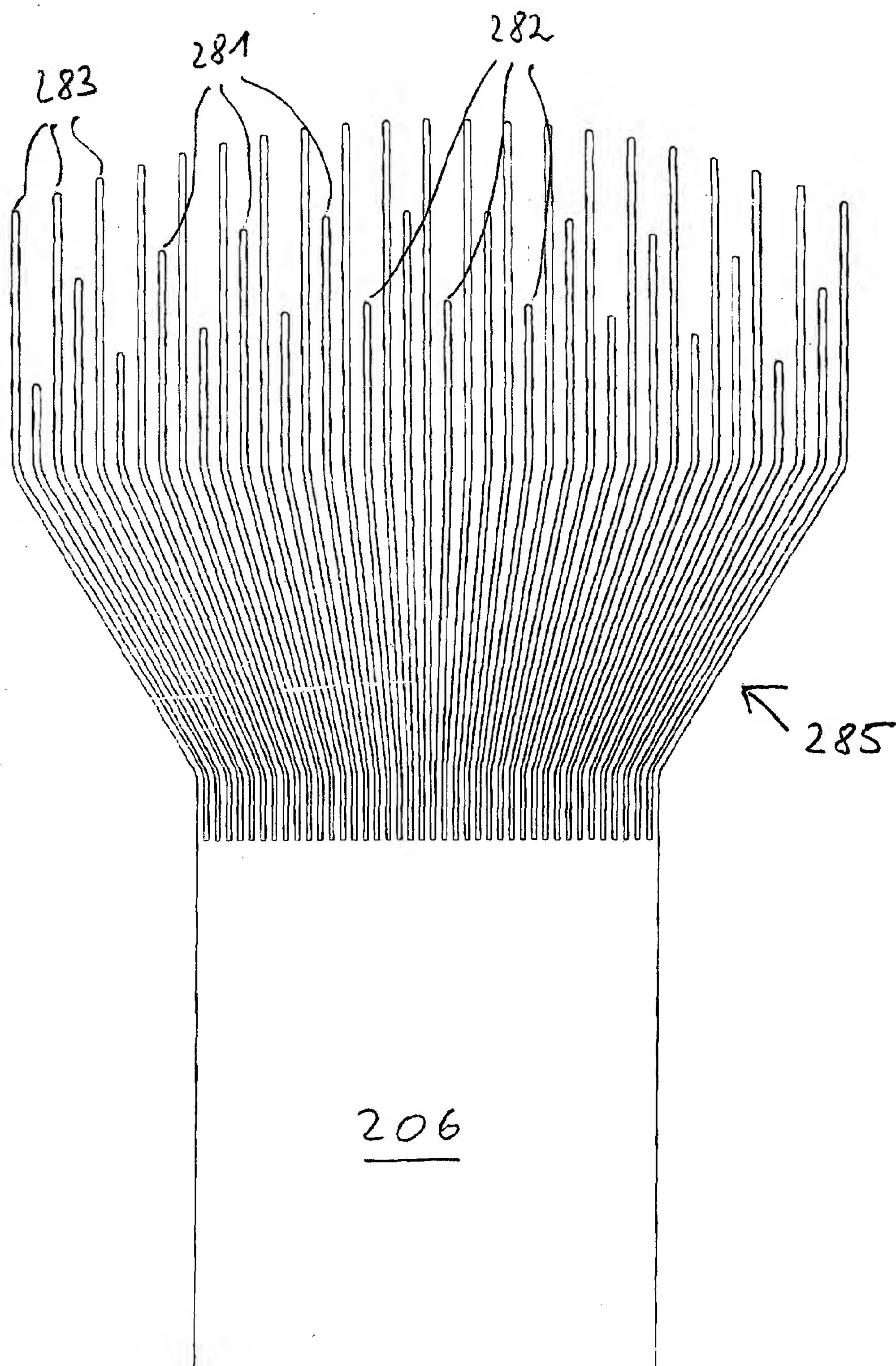
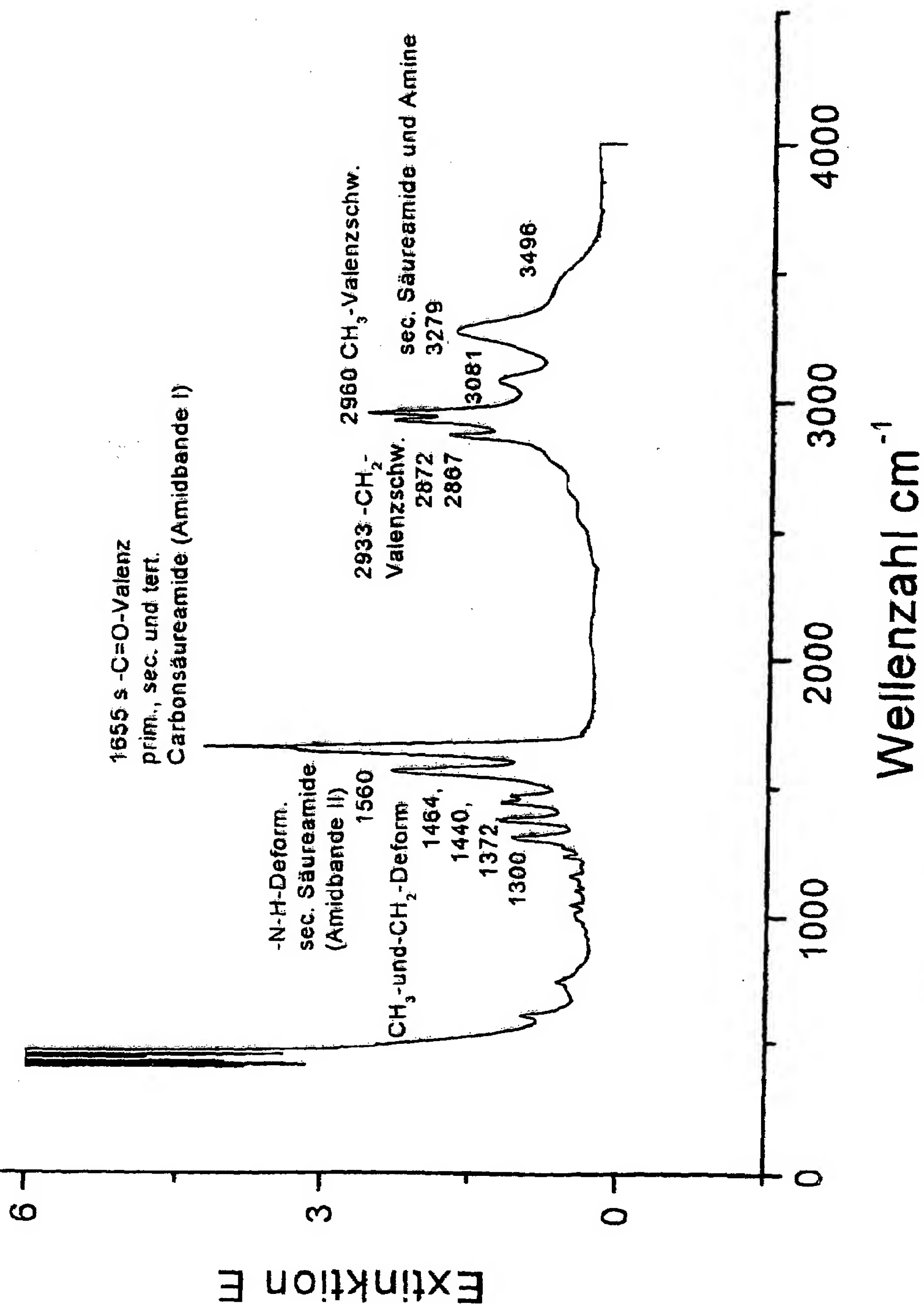


Fig. 9

IR-Spectrum von Essigsäure-n-butylamid



Wellenzahl cm^{-1}

Fig. 10

Verhältnis der Volumenströme
5:250:5

Ausbeute 100 %
Langzeitversuch

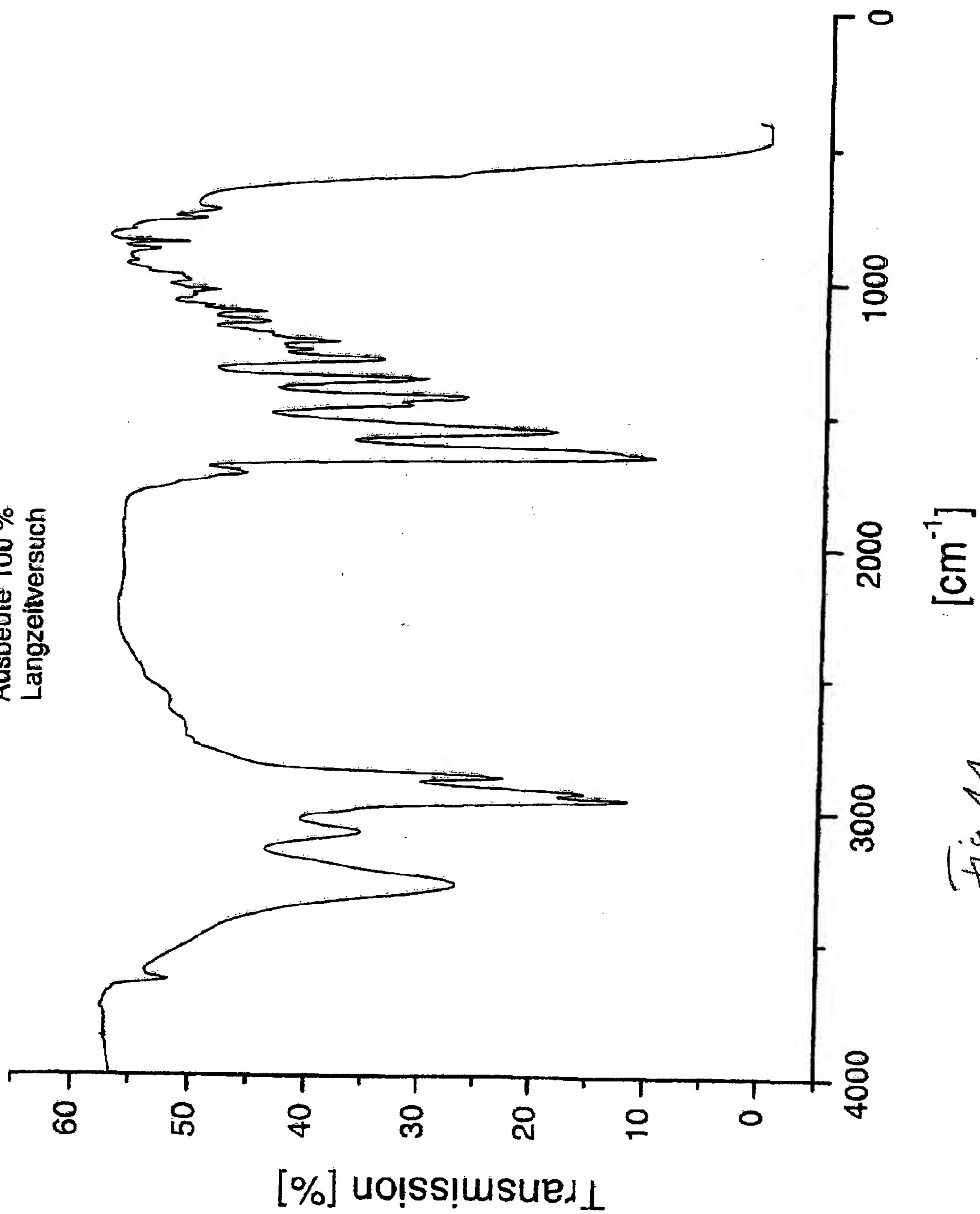


Fig. 11